

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2012年6月7日(07.06.2012)

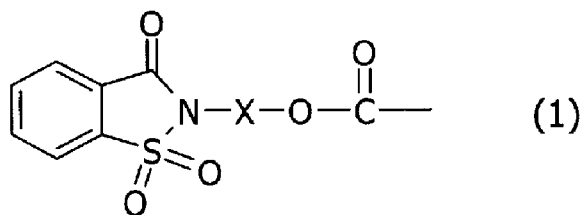


(10) 国際公開番号
WO 2012/073904 A1

- (51) 国際特許分類:
C08L 67/02 (2006.01) C08G 63/91 (2006.01)
 - (21) 国際出願番号: PCT/JP2011/077422
 - (22) 国際出願日: 2011年11月28日(28.11.2011)
 - (25) 国際出願の言語: 日本語
 - (26) 国際公開の言語: 日本語
 - (30) 優先権データ:
特願 2010-269789 2010年12月2日(02.12.2010) JP
特願 2010-269790 2010年12月2日(02.12.2010) JP
 - (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 株式会社 A D E K A (ADEKA CORPORATION) [JP/JP]; 〒1160012 東京都荒川区東尾久7丁目2番35号 Tokyo (JP).
 - (72) 発明者; および
 - (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 酒井 香奈枝(SAKAI Kanae) [JP/JP]; 〒3360022 埼玉県さいたま市南区白幡5丁目2番13号 株式会社 A D E K A 内 Saitama (JP). 川本 尚史(KAWAMOTO Naoshi) [JP/JP]; 〒3360022 埼玉県さいたま市南区白幡5丁目2番13号 株式会社 A D E K A 内 Saitama (JP). 漆原 剛 (URUSHIHARA Tsuyoshi) [JP/JP]; 〒3360022 埼玉県さいたま市南区白幡5丁目2番13号 株式会社 A D E K A 内 Saitama (JP).
 - (74) 代理人: 本多 一郎(HONDA Ichiro); 〒1050001 東京都港区虎ノ門一丁目14番1号 郵政福祉琴平ビル6階 本多国際特許事務所 Tokyo (JP).
 - (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
 - (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーロピア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告(条約第21条(3))

(54) Title: POLYESTER RESIN COMPOSITION AND MOLDED BODY OF SAME

(54) 発明の名称: ポリエステル樹脂組成物及びその成形体



(57) Abstract: Provided are: a polyester resin composition having improved physical properties; and a molded body of the polyester resin composition. The polyester resin composition contains (A) a polyester resin and (B1) a terminally modified polyethylene terephthalate or (B2) a terminally modified polybutylene terephthalate, and is characterized in that the component (B1) or (B2) is a polyethylene terephthalate or a polybutylene terephthalate, ends of which are modified with a group represented by general formula (1) or with a group represented by general formula (1) and a metal carboxylate. (In the formula, X represents a direct bond or an alkylene group having 1-12 carbon atoms.)

(57) 要約: 物性改善がなされたポリエステル樹脂組成物及びその成形体を提供する。(A) ポリエステル樹脂と、(B1) 末端修飾ポリエチレンテレフタレートまたは(B2) 末端修飾ポリブチレンテレフタレートとを含有するポリエステル樹脂組成物であって、前記(B1)または(B2)が、下記一般式(1)で表される基、又は、下記一般式(1)で表される基及びカルボン酸金属塩で末端が修飾されたポリエチレンテレフタレートまたはポリブチレンテレフタレートであることを特徴とするポリエステル樹脂組成物。(式中、Xは、直接結合又は炭素原子数1~12のアルキレン基を表す。)



WO 2012/073904 A1

明 細 書

発明の名称： ポリエステル樹脂組成物及びその成形体

技術分野

[0001] 本発明は、ポリエステル樹脂組成物及びその成形体に関し、詳しくは添加する結晶核剤を改良することにより物性改善がなされたポリエステル樹脂組成物及びその成形体に関する。

背景技術

[0002] 多価カルボン酸とポリアルコールの重縮合によって得られるポリエステル樹脂は、ポリエチレンテレフタレート、ポリトリメチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリブチレンテレフタレートなどが知られている。特に、ポリエチレンテレフタレートは、透明性、耐熱性、耐薬品性、衛生性、染色性及び経済性等に優れた樹脂であり、繊維、フィルム用途、炭酸飲料、ジュース、ミネラルウォーター等の飲料容器（ペットボトル）、化粧品・医療品容器、洗剤・シャンプー容器、電子写真トナー、食品用包装材、医薬品包装材、ラップ等の包装材料等に広く採用されている。

[0003] しかし、ポリエチレンテレフタレートは結晶性樹脂であるにも関わらず、結晶化速度が極めて遅いため、成形条件の幅が非常に狭く、かつ加工サイクルの向上が困難であるため、成形材料としての利用は未だ限られている。また、成形して得られる成形品の熱変形温度が低いため、使用温度が制限される問題があった。

[0004] 結晶化速度を向上させる方法としては、結晶核剤を添加することが知られており、窒化ケイ素、安息香酸ナトリウム塩、芳香族リン酸エステル金属塩、ジベンジリデンソルビトール等の化合物が知られている。

[0005] また、特許文献1には、ポリエチレンテレフタレート及びポリブチレンテレフタレートの2種の樹脂に対して、無機フィラーを含有してなる食器類用ポリエステル成形材料において、結晶化促進剤として、モンタン酸ナトリウ

ム、ステアリン酸ナトリウム、モンタン酸カルシウム及びステアリン酸カルシウムが提案されている。

[0006] また、特許文献2、特許文献3において、スルホンアミド化合物の金属塩をポリエステル樹脂の結晶核剤として提案している。

[0007] また、熱可塑性ポリエステル樹脂のうち、特にポリブチレンテレフタレートは、耐熱性、耐薬品性、寸法安定性、成形性に優れており、紫外線遮断等の特性を有し、難燃性を持たせやすいことから、汎用エンジニアリングプラスチックとして、電気・電子、自動車の電装部品等に広く使用されている。

[0008] 結晶核剤は、樹脂の結晶化を促進することによって、成形の際の金型温度を下げて光沢のある成形品を成形可能とすることができ、樹脂の透明性、剛性、成形サイクルなどが改善可能であるが、ポリブチレンテレフタレートは、熱可塑性ポリエステル樹脂の中でも、結晶核剤添加による物性改善が困難な樹脂であり、新たな結晶核剤の開発が望まれていた。

[0009] 例えば、特許文献4には、ポリアルキレンテレフタレートの結晶核剤として、脂肪族又は芳香族モノカルボン酸のアルカリ金属塩、イオノマー樹脂、タルク、重炭酸ナトリウムなどが提案されており、ポリエチレンテレフタレートに対する使用例が開示されている。

[0010] また、特許文献5には、難燃性ポリブチレンテレフタレート組成物の核剤として、タルク、リン酸カルシウム、金属酸化物、ステアリン酸ナトリウムなどが提案されている。

[0011] また、特許文献6には、ポリブチレンテレフタレート樹脂、ポリエチレンテレフタレート樹脂、無機充填剤、及び結晶核剤からなるポリブチレンテレフタレート樹脂組成物を成形した成形品が提案されており、結晶核剤として、ボロンナイトライド、ガラス繊維、カーボン繊維、ガラスビーズ、ガラスフレーク、タルク及びマイカなどが例示されている。

[0012] また、特許文献7には、メルトインデックスが0.5～5g/10分(250℃、325g荷重、オリフィス径2mm)のポリブチレンテレフタレート樹脂に対し、無機結晶核剤と、ポリアルキル水素シロキサン及び α オレフ

インとのグラフトポリマーを配合した熱可塑性樹脂組成物において、無機結晶核剤として、珪酸マグネシウムが提案されている。

[0013] また、前記特許文献1には、前述のようにポリエチレンテレフタレート及びポリブチレンテレフタレートの2種の樹脂に対して、結晶化促進剤としてモンタン酸ナトリウム等が提案されている。

先行技術文献

特許文献

- [0014] 特許文献1：特開2001-200148号公報
特許文献2：特開2007-327028号公報
特許文献3：国際公開2008/038465号
特許文献4：特開平05-214222号公報
特許文献5：特開平07-133412号公報
特許文献6：特開平08-183114号公報
特許文献7：特開平09-188805号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0015] しかしながら、特許文献1等に記載の従来公知の結晶核剤による物性改善効果は未だ不十分なものであり、新たな結晶核剤の開発が求められていた。また、特許文献2及び特許文献3に記載のスルホンアミド化合物の金属塩をポリエステル樹脂に添加して成形した場合、樹脂中におけるスルホンアミド化合物の分散性が乏しく、成形加工して得られる成形品の一部が白濁する問題があった。

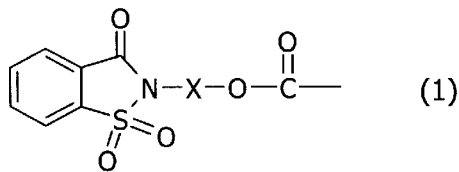
[0016] そこで、本発明の目的は、上記の問題を解決し物性改善がなされたポリエステル樹脂組成物及びその成形体を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0017] 本発明者等は、上記現状に鑑み検討を重ねた結果、特定の構造を有する基をポリエチレンテレフタレートの末端に導入した末端修飾ポリエチレンテレ

フタレートを経晶核剤として用いることによって、あるいは特定の構造を有する基をポリブチレンテレフタレートの末端に導入した末端修飾ポリブチレンテレフタレートを結晶核剤として用いることによって、上記課題を解決できることを見出し、本発明を完成するに至った。

[0018] すなわち、本発明のポリエステル樹脂組成物は、(A) ポリエステル樹脂と、(B 1) 末端修飾ポリエチレンテレフタレートとを含有するポリエステル樹脂組成物であって、前記(B 1) 末端修飾ポリエチレンテレフタレートが、下記一般式(1)で表される基、又は、下記一般式(1)で表される基及びカルボン酸金属塩で末端が修飾されたポリエチレンテレフタレートであることを特徴とするポリエステル樹脂組成物である。

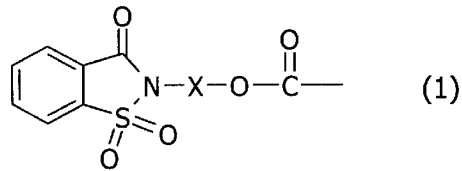


(式中、Xは、直接結合又は炭素原子数1～12のアルキレン基を表す。)

[0019] 前記(A) ポリエステル樹脂と、前記(B 1) 末端修飾ポリエチレンテレフタレートから前記一般式(1)で表される基を除いた残部との合計100質量部に対して、前記一般式(1)で表される基の含有量が0.001～1質量部であることが好ましい。

[0020] 本発明のシートは、上記のポリエステル樹脂組成物をシート成形してなるシートであって、アニール処理をされていないことを特徴とするものである。

[0021] また、本発明の他のポリエステル樹脂組成物は、(A) ポリエステル樹脂と、(B 2) 末端修飾ポリブチレンテレフタレートとを含有するポリエステル樹脂組成物であって、前記(B 2) 末端修飾ポリブチレンテレフタレートが、下記一般式(1)で表される基、又は、下記一般式(1)で表される基及びカルボン酸金属塩で末端が修飾されたポリブチレンテレフタレートであることを特徴とするポリエステル樹脂組成物である。



(式中、Xは、直接結合又は炭素原子数1～12のアルキレン基を表す。)

[0022] 前記(A) ポリエステル樹脂と、前記(B2) 末端修飾ポリブチレンテレフタレートから前記一般式(1)で表される基を除いた残部との合計100質量部に対して、前記一般式(1)で表される基の含有量が0.001～5質量部であることが好ましい。

[0023] 本発明のポリエステル樹脂組成物は、前記(A) ポリエステル樹脂が、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリトリメチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート及びポリブチレンナフタレートからなる群から選ばれる1種以上のポリエステル樹脂であることが好ましい。

[0024] また、本発明のポリエステル樹脂組成物は、前記カルボン酸金属塩が、カルボン酸ナトリウム塩であることが好ましい。

[0025] 本発明の成形体は、本発明のポリエステル樹脂組成物を成形して得られることを特徴とするものである。

発明の効果

[0026] 本発明により、物性改善がなされたポリエステル樹脂組成物及びその成形体を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0027] [図1]核剤未配合のポリエチレンテレフタレート(PET)のX線光電子分光スペクトルである。

[図2]1,2-ベンズイソチアゾール-3(2H)-オン1,1-ジオキシドナトリウム塩1%配合PETのX線光電子分光スペクトルである。

[図3]1,2-ベンズイソチアゾール-3(2H)-オン1,1-ジオキシドナトリウム塩3%配合PETのX線光電子分光スペクトルである。

[図4] 1, 2-ベンズイソチアゾール-3 (2H)-オン1, 1-ジオキシドナトリウム塩5%配合PETのX線光電子分光スペクトルである。

[図5] 1, 2-ベンズイソチアゾール-3 (2H)-オン1, 1-ジオキシドナトリウム塩のX線光電子分光スペクトルである。

[図6] N-エチルアルコール-1, 2-ベンズイソチアゾール-3 (2H)-オン1, 1-ジオキシドのX線光電子分光スペクトルである。

発明を実施するための形態

[0028] [(A) ポリエステル樹脂]

本発明において用いられる(A) ポリエステル樹脂は、多価カルボン酸モノマーと多価アルコール成分から合成される、エステル結合により連結した重合体である。好ましくは、芳香族ジカルボン酸またはそのアルキルエステルを主たる酸成分とし、(B1)末端修飾ポリエチレンテレフタレートの使用に対してはエチレングリコールを、また(B2)末端修飾ポリブチレンテレフタレートの使用に対しては1, 4-ブタンジオールを夫々主たるグリコール成分とするポリエステル樹脂である。本発明において、芳香族ジカルボン酸またはそのアルキルエステルとしては、テレフタル酸、イソフタル酸、ナフタレンジカルボン酸、ジフェニルジカルボン酸およびそれらのアルキルエステル等が挙げられる。また、それらのハロゲン化相当品のような他の芳香族ジカルボン酸基を含むものであってもよい。中でもテレフタル酸またはジメチルテレフタル酸を用いることが好ましく、通常、酸成分中75モル%以上、好ましくは80モル%以上、最も好ましくは90モル%以上を用いる。これらの酸成分は1種を用いてもよく、2種以上を混合して使用してもよい。

[0029] また、共重合成分として、前記の化合物の他にアジピン酸、セバシン酸、コハク酸、シュウ酸等の脂肪族ジカルボン酸またはそれらのアルキルエステルを使用することができる。さらに、トリメリット酸等のような3官能以上のカルボン酸、無水トリメリット酸のような酸の無水物を少量使用することができる。芳香族ジカルボン酸のアルキルエステルとしては、メチルエステ

ルが主たる利用化合物に挙げられるが、エチルエステル、プロピルエステル、ブチルエステル等を1種単独で用いてもよく、2種以上を混合して用いてもよく、目的に応じて任意に選択可能である。

[0030] 本発明において、エチレングリコールまたは1,4-ブタンジオール以外のグリコール成分としては、プロピレングリコール、1,6-ヘキサジオール、ネオペンチルグリコール、デカメチレングリコール、シクロヘキサジメタノール、ポリ(オキシ)エチレングリコール、ポリテトラメチレングリコール、ポリメチレングリコール等のアルキレングリコールの1種を用いてもよく、また、2種以上を混合して用いてもよく、目的に応じて任意に選択可能である。さらに、少量のグリセリンのような多価アルコール成分を用いてもよく、また、少量のエポキシ化合物を用いてもよい。

[0031] グリコール成分中のエチレングリコールの割合は75モル%以上が好ましく、80モル%以上がより好ましく、90モル%以上が特に好ましい。

[0032] 上記好適なポリエステル樹脂の例としては、例えば、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリシクロヘキサジメチレンテレフタレート等のポリアルキレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリブチレンナフタレート等のポリアルキレンナフタレート等の芳香族ポリエステルが挙げられる。

[0033] 本発明にかかるポリエステル樹脂は、複数のポリエステル樹脂の共重合体や変性体であってもよく、また、上記の好適なポリエステル樹脂と下記の他の樹脂とのポリマーアロイでもよい。ここでいうポリマーアロイとは高分子多成分系のことであり、共重合によるブロックポリマーであってもよく、混合などによるポリマーブレンドでもよい。

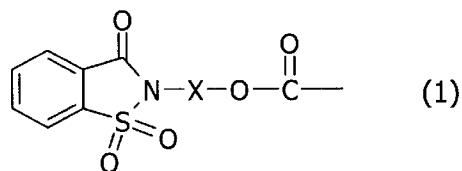
[0034] 上記他の樹脂としては、ポリエステルの構成成分と他の酸成分及び／又はグリコール成分(例えばイソフタル酸、アジピン酸、セバシン酸、グルタル酸、ジフェニルメタンジカルボン酸、ダイマー酸のような酸成分、ヘキサメチレングリコール、ビスフェノールA、ネオペンチルグリコールアルキレンオキシド付加体のようなグリコール成分)を共重合したポリエーテルエス

テル樹脂；ポリヒドロキシブチレート、ポリカプロラクトン、ポリブチレンサクシネート、ポリエチレンサクシネート、ポリ乳酸樹脂、ポリリンゴ酸、ポリグリコール酸、ポリジオキサノン、ポリ（２-オキセタノン）等の分解性脂肪族ポリエステル；芳香族ポリエステル／ポリエーテルブロック共重合体、芳香族ポリエステル／ポリラクトンブロック共重合体、ポリアリレートなどの広義のポリエステル樹脂も使用される。

本発明においては、特に融点が２００℃～３００℃の耐熱性を有する特性を示すものが好ましく使用される。

[0035] [(B1) 末端修飾ポリエチレンテレフタレート]

本発明に係る(B1)末端修飾ポリエチレンテレフタレートは、下記一般式(1)で表される基、又は、下記一般式(1)で表される基及びカルボン酸金属塩で末端が修飾されたポリエチレンテレフタレートである。下記式(1)中、Xが表す炭素原子数１～１２のアルキレン基としては、メチレン基、エチレン基、１，３-プロピレン基、１，４-ブチレン基、１，５-ペンチレン基、１，６-ヘキシレン基、１，２-ブチレン基、１，２-ペンチレン基、１，２-ヘキシレン基、１，９-ノニレン基、１，１０-デシレン基、１，１１-ウンデシレン基、１，１２-ドデシレン基等が挙げられ、エチレン基が好ましい。



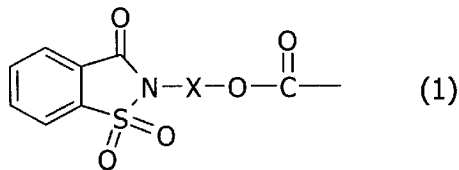
(式中、Xは、直接結合又は炭素原子数１～１２のアルキレン基を表す。)

[0036] (B1)末端修飾ポリエチレンテレフタレートの平均分子量については、特に制限されることなく任意の分子量を選択できるが、２００より小さいとポリエステル樹脂中での滞留性が悪く、成形品の表面にブルームが現れる場合があり、２００００を超えると結晶核剤としての効果を発揮できない場合があるので、２００～２００００が好ましく、５００～１００００がより好ましい。

[0037] 本発明のポリエステル樹脂組成物において、(A)ポリエステル樹脂と(B1)末端修飾ポリエチレンテレフタレートから上記一般式(1)で表される基を除いた残部との合計100質量部に対し、上記一般式(1)で表される基の含有量が、0.001~5質量部であることが好ましく、0.005~0.5質量部であることがより好ましい。

[0038] [(B2)末端修飾ポリブチレンテレフタレート]

本発明に係る(B2)末端修飾ポリブチレンテレフタレートは、下記一般式(1)で表される基、又は、下記一般式(1)で表される基及びカルボン酸金属塩で末端が修飾されたポリブチレンテレフタレートである。下記式(1)中、Xが表す炭素原子数1~12のアルキレン基としては、メチレン基、エチレン基、1,3-プロピレン基、1,4-ブチレン基、1,5-ペンチレン基、1,6-ヘキシレン基、1,2-ブチレン基、1,2-ペンチレン基、1,2-ヘキシレン基、1,9-ノニレン基、1,10-デシレン基、1,11-ウンデシレン基、1,12-ドデシレン基等が挙げられ、1,4-ブチレン基が好ましい。



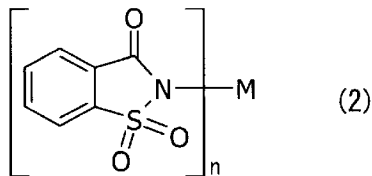
(式中、Xは、直接結合又は炭素原子数1~12のアルキレン基を表す。)

[0039] (B2)末端修飾ポリブチレンテレフタレートの平均分子量については、特に制限されることなく任意の分子量を選択できるが、200より小さいとポリエステル樹脂中での滞留性が悪く、成形品の表面にブルームが現れる場合があり、20000を超えると結晶核剤としての効果を発揮できない場合があるので、200~20000が好ましく、500~10000がより好ましい。

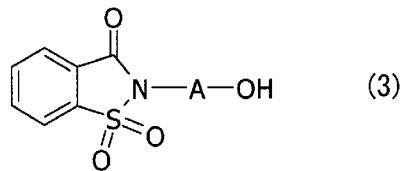
[0040] 本発明のポリエステル樹脂組成物において、(A)ポリエステル樹脂と(B2)末端修飾ポリブチレンテレフタレートから上記一般式(1)で表される基を除いた残部との合計100質量部に対し、上記一般式(1)で表され

る基の含有量が、0.001～5質量部であることが好ましく、0.005～1質量部であることがより好ましい。

[0041] ポリエチレンテレフタレートまたはポリブチレンテレフタレートの末端を一般式(1)で表される基で修飾する方法、即ち該基を導入する方法としては、ポリエチレンテレフタレートまたはポリブチレンテレフタレートの末端がハロゲン又はハロゲン化アルキレン基で修飾されたポリマーと下記一般式(2)で表される化合物を反応させる方法、下記一般式(3)で表される化合物を重合モノマー(ストッパー)として、ポリエチレンテレフタレートまたはポリブチレンテレフタレートの重合時に添加して重合する方法、下記一般式(2)又は(3)で表される化合物をモノマーのジオール成分に溶解させて、ポリエチレンテレフタレートまたはポリブチレンテレフタレートの重合時に添加する方法等が挙げられる。



(式(2)中、nは、1又は2を表し、Mは水素原子又は金属原子を表し、nが1の場合、Mは水素原子又はアルカリ金属を表し、nが2の場合、Mは2価の金属原子を表す。)



(式(3)中、Aは炭素原子数1～12のアルキレン基を表す。)

[0042] 上記一般式(2)中のAで表される炭素原子数1～12のアルキレン基としては上記したアルキレン基と同様のものが挙げられ、ポリエチレンテレフタレートに対してはエチレン基が、またポリブチレンテレフタレートに対しては1,4-ブチレン基が夫々好ましい。上記一般式(2)中のMで表される金属原子としては、リチウム、カリウム、ナトリウム、マグネシウム、カ

ルシウム、ストロンチウム、バリウム、チタニウム、マンガン、鉄、亜鉛、珪素、ジルコニウム、イットリウム又はバリウムから選択される金属が挙げられる。カリウム、リチウム、ナトリウムは、ポリエステル樹脂の結晶化促進効果に優れた結晶核剤が得られるので好ましく、ナトリウムが、特に好ましい。

[0043] また、上記一般式(2)又は一般式(3)で表される化合物をポリエチレンテレフタレートまたはポリブチレンテレフタレートに直接導入する場合には、ポリエチレンテレフタレートまたはポリブチレンテレフタレートの重合に続けてこれらの化合物を反応系内に導入して重合を継続すると、ポリエチレンテレフタレートまたはポリブチレンテレフタレートの末端に化学的に結合したものが得られる。

[0044] また、その他のポリエチレンテレフタレートまたはポリブチレンテレフタレートの末端修飾方法としては、上記一般式(2)で表される化合物、又は、上記一般式(3)で表される化合物およびカルボン酸金属塩をポリエチレンテレフタレートまたはポリブチレンテレフタレートの重合後に添加して混合し、加熱溶融する方法が挙げられる。

[0045] 上記一般式(2)又は一般式(3)で表される化合物を用いる場合、粉砕処理を施されているものを用いることが好ましい。粉砕処理は、粉砕機を用いて、体積平均粒子径が好ましくは0.5~50 μm 、より好ましくは1 μm ~30 μm の範囲内になるまで粉砕処理を行う。また、粉砕処理により250 μm のメッシュパスが90質量%以上、より好ましくは95質量%以上にすることが好ましい。

[0046] 体積平均粒子径が0.5 μm 未満では、粉砕に要するエネルギー消費が多くて不経済であり、50 μm より大きいと上記粉砕品を用いて作製した末端修飾ポリエチレンテレフタレートまたは末端修飾ポリブチレンテレフタレートをポリエステル樹脂に配合して成形しようとする場合、ポリエチレンテレフタレートまたはポリブチレンテレフタレート中に上記一般式(2)または(3)で表される化合物が分散せずに凝集し、最終的な成形品の外観が損な

われる場合がある。また、250メッシュパスが90質量%未満では、ポリエチレンテレフタレートまたはポリブチレンテレフタレートとの溶融混練時に、樹脂中に粗大粒子が融け残って成形品の外観や物性に悪影響する場合がある。

[0047] なお、本発明において、体積平均粒子径とは、レーザー回折・積乱式粒度分布計（日機装（株）製商品名マイクロトラックMT300011）による体積平均が50%となる数値を表す。

[0048] 上記粉砕に用いる粉砕機としては、公知の粉砕機を使用することができる。例えば、ロール式粉砕機、高速回転衝撃式粉砕機、気流式粉砕機、せん断・磨砕式の粉砕方式、媒体式粉砕機を利用する粉砕機が好ましく用いられる。これら粉砕方式を組み合わせたものであってもよく、粉砕機器を連結したものであってもよい。また、分級機構を導入したシステムも採用することができる。

[0049] 上記ロール式粉砕機としては、回転するロールの間で粉砕が行われるロール回転型ミル、ローラーがテーブルや容器内で転動するローラー転動型ミル等が挙げられる。

[0050] 上記高速回転衝撃式粉砕機としては、高速回転するローターに試料を衝突させて、その衝撃力による微細化を達成するものが挙げられる。具体的には、ローターに固定式あるいはスイング式の衝撃子を取り付けたハンマーミルタイプのハンマー型、回転する円盤にピンや衝撃ヘッドを取り付けたピンミルタイプの回転円盤型、試料がシャフト方向に搬送されながら粉砕する軸流型、狭い環状部での粒子の微細化を行うアニューラー型等が挙げられる。

[0051] 上記気流式粉砕機（ジェットミル）としては、高速気流体の持つ運動エネルギーを利用して、試料を加速して衝突させて粉砕する装置のことであり、粒子を直接衝突板に衝突させて粉砕を行うタイプのものと、粒子同士の摩擦による微粒子化が主体的な粉砕を担うタイプのものが挙げられる。

[0052] 上記せん断・磨砕式粉砕機としては、圧力下でのせん断摩擦力を利用した磨砕型の粉砕機が挙げられる。

- [0053] 上記媒体式粉砕機としては、容器が回転又は振動などの運動をすることにより、内部の粉砕媒体を駆動する容器駆動型ミルと、容器内部にある攪拌機構により媒体に運動力を与える媒体攪拌型ミルが挙げられる。上記容器駆動型ミルとしては、ボールミル等の転動式ボールミル、振動ミル、遠心ミル、遊星ミル、ハイスイングミル等が挙げられ、上記媒体攪拌型ミルとしては、容器の形状により、塔型、攪拌槽型、流通管型、アニユラー型等が挙げられる。
- [0054] 上記粉砕媒体は、固体のものであり、例えば、ガラス、メノー、窒化ケイ素、ジルコニア、ステアタイトなどのセラミック等の非金属製、アルミナ、チタニア等の金属製、タングステンカーバイト、クローム鋼、ステンレススチール等の合金製のものが挙げられる。形態としては限定されないが、例えば、ビーズ、ボール状のものが挙げられる。
- [0055] 粉砕処理を施す場合は、一般式（2）又は一般式（3）で表される化合物を含水率が8質量%以下になるまで乾燥してから粉砕処理を行うことが好ましく、5質量%以下になるまで乾燥してから行うのがより好ましい。含水率が8質量%を超えていると、粉砕時間が長くなって粉砕効率が悪化したり、粉砕槽内において粉砕品同士が付着して固まったり、あるいは粉砕後に二次凝集する恐れがある。また、含水率が0.01質量%未満になるまでの乾燥は不経済である。
- [0056] 尚、上記含水率は、株式会社エー・アンド・デイ製加熱乾燥式水分計MS-70を用いて、標準モード測定精度HI、試料皿温度160℃の測定条件で、試料10gの重量減少量を測定試料に含まれた水分量とし、該水分量と測定試料の重量の比を含水率として評価したものである。
- [0057] また、一般式（2）又は（3）で表される化合物をポリエチレンテレフタレートまたはポリブチレンテレフタレートと加熱溶融させる場合、上記一般式（2）又は（3）で表される化合物を粉砕処理した後、さらに1質量%以下の含水率になるまで乾燥したものをを用いることが好ましい。含水率が1質量%を超えるものを用いて作製した末端修飾ポリエチレンテレフタレートま

たは末端修飾ポリブチレンテレフタレートポリエステル樹脂に配合して成形加工する場合、気泡が発生して成形品の外観を損ねる場合がある。また、0.01質量%未満になるまで乾燥させるのは不経済である。乾燥方法としては、公知の乾燥機を使用することができる。例えば、スプレードライヤー、真空凍結乾燥機、減圧乾燥機、移動式乾燥機、流動層乾燥機、回転式観測機、攪拌式乾燥機等が挙げられ、これら複数を組み合わせたものであってもよい。

[0058] 粉碎品同士が弱い粒子間引力で凝集している場合には、当該凝集体を解砕処理するのが好ましい。解砕する装置としては、公知の解砕処理装置を用いることができ、例えば、ジェットミル、ヘンシェルミル等が挙げられる。

[0059] 上記カルボン酸金属塩としては、カルボン酸リチウム塩、カルボン酸カリウム塩、カルボン酸ナトリウム塩等が挙げられるが、カルボン酸ナトリウム塩が特に好ましい。

[0060] [他の添加剤]

本発明のポリエステル樹脂組成物には、必要に応じてさらに他の添加剤を配合することができる。他の添加剤の配合方法としては、目的に応じた配合量でポリエステル樹脂と混合して、押出機などの成形加工機で溶融混練して造粒、成形する方法が挙げられ、本発明に係る結晶核剤と一緒に他の添加剤を混合して添加してもよく、本発明のポリエステル樹脂組成物の溶融混練後に、他の添加剤を添加して、成形加工機を用いて成形してもよい。

[0061] 他の添加剤としては例えば、可塑剤、充填剤、フェノール系酸化防止剤、リン系酸化防止剤、チオエーテル系酸化防止剤、紫外線吸収剤、ヒンダードアミン化合物、重金属不活性化剤、本発明に用いる結晶核剤以外のその他の結晶核剤、難燃剤、金属石鹼、ハイドロタルサイト、充填剤、滑剤、帯電防止剤、顔料、染料などが挙げられる。

[0062] 可塑剤、特に、ポリエーテルエステル系可塑剤及び／又は安息香酸エステル系可塑剤の少なくとも一種を0.1～20質量部を含有すると、ポリエステル樹脂の成形性や、得られる成形品の収縮異方性、表面特性等を改善する

ことが可能である為好ましい。

[0063] 上記可塑剤としては、例えば、ポリエチレングリコールブタン酸エステル、ポリエチレングリコールイソブタン酸エステル、ポリエチレングリコールジ(2-エチルブチル酸)エステル、ポリエチレングリコール(2-エチルヘキシル酸)エステル、ポリエチレングリコールデカン酸エステル、アジピン酸ジブトキシエタノール、アジピン酸ジ(ブチルジグリコール)、アジピン酸ジ(ブチルポリグリコール)、アジピン酸ジ(2-エチルヘキシロキシエタノール)、アジピン酸ジ(2-エチルヘキシルジグリコール)、アジピン酸ジ(2-エチルヘキシルポリグリコール)、アジピン酸ジオクトキシエタノール、アジピン酸ジ(オクチルジグリコール)、アジピン酸ジ(オクチルポリグリコール)、エチレングリコール安息香酸エステル、ジエチレングリコールジ安息香酸エステル、ポリエチレングリコールジ安息香酸エステル、プロピレングリコールジ安息香酸エステル、ジプロピレングリコールジ安息香酸エステル、トリプロピレングリコールジ安息香酸エステル、1,3-ブタンジオールジ安息香酸エステル、1,4-ブタンジオール安息香酸エステル、1,6-ヘキサジオールジ安息香酸エステル、3-メチル-1,5-ペンタンジオールジ安息香酸エステル、1,8-オクテンジオールジ安息香酸エステル、三洋化成工業(株)製商品名EP-400、及び多塩基酸と多価アルコールの縮合体を基本構造とし、その両端が一価のアルコール又は一塩基酸で停止されたポリエステル系可塑剤など等が挙げられる。

[0064] 上記多塩基酸としては、ポリエステル用モノマーとして知られるものを用いても使用することができる。例えば、テレフタル酸、イソフタル酸、トリメリット酸、ピロメリット酸、ナフタレンジカルボン酸等の芳香族カルボン酸類、マレイン酸、フマル酸、コハク酸、アルケニルコハク酸、アジピン酸等の脂肪族カルボン酸類、これら多塩基酸のメチルエステル化合物、及びそれらの無水化物等が挙げられる。多塩基酸は一種単独で、又は二種以上を併用できる。

[0065] 上記多価アルコールとしては、ポリエステル用モノマーとして知られるも

のを使用でき、例えば、エチレングリコール、1, 2-プロピレングリコール、1, 3-プロピレングリコール、2-メチル-1, 3-プロパンジオール、1, 4-ブタンジオール、1, 5-ペンタンジオール、2, 2-ジメチル1, 3-プロパンジオール（ネオペンチルグリコール）、2, 2-ジエチル-1, 3-プロパンジオール（3, 3-ジメチロールペンタン）、2-n-ブチル-2-エチル-1, 3-プロパンジオール、（3, 3-ジメチロールヘプタン）、3-メチル-1, 5-ペンタンジオール-1, 6-ヘキサジオール、2, 2, 4-トリメチル-1, 3-ペンタンジオール、2-エチル1, 3-ヘキサジオール、2-メチル-1, 8-オクタンジオール、1, 9-ノナンジオール、1, 10-デカンジオール、1, 12-オクタデカンジオール、グリセリン等の炭素数2~18の脂肪族多価アルコール類、シクロヘキサジオール、シクロヘキサジメタノール、水添ビスフェノールA等の脂環式多価アルコール類、ビスフェノールAのエチレンオキサイド付加物、ビスフェノールAのプロピレンオキサイド付加物等の芳香族ジオール類などが挙げられる。多価アルコールは一種単独で使用してもよく、又は二種以上を併用してもよい。

[0066] 上記一価のアルコールの具体例としては、例えば、オクタノール、イソオクタノール、2-エチルヘキサノール、ノナノール、イソノナノール、2-メチルオクタノール、デカノール、イソデカノール、ウンデカノール、ドデカノール、トリデカノール、テトラデカノール、ヘキサデカノール、オクタデカノール等の8~18の脂肪族アルコールや、シクロヘキサノール等の脂環式アルコール、ベンジルアルコール、2-フェニルエタノール、1-フェニルエタノール、2-フェノキシエタノール、3-フェニル-1-プロパノール、2-ヒドロキシエチルベンジルエーテル等の芳香族アルコール等が挙げられる。一価アルコールは、一種単独で使用してもよく、二種以上を併用してもよい。

[0067] 上記一塩基酸の具体例としては、例えば、カプリル酸、ノナン酸、カプリン酸、ウンデシル酸、ラウリル酸等のモノカルボン酸類、ジカルボン酸のモ

ノエステル類、トリカルボン酸のジエステル類などが挙げられ、一塩基酸は、一種単独で使用してもよく、二種以上を併用してもよい。

[0068] 上記した可塑剤以外の他の可塑剤としては、脂環式エステル系可塑剤が挙げられる。例えば、シクロヘキサンジカルボン酸エステル類、エポキシ基を有するシクロヘキサンジカルボン酸エステル類、又は1, 2-シクロヘキサンジカルボン酸無水物等のシクロヘキサンジカルボン酸無水物類等が挙げられる。

[0069] さらに他の可塑剤としては、例えば、エチルベンジルフタレート、ブチルベンジルフタレート、イソブチルベンジルフタレート、ヘプチルベンジルフタレート、(2-エチルヘキシル)ベンジルフタレート、n-オクチルベンジルフタレート、ノニルベンジルフタレート、イソノニルベンジルフタレート、イソデシルベンジルフタレート、ウンデシルベンジルフタレート、トリデシルベンジルフタレート、シクロヘキシルベンジルフタレート、ベンジル-3-(イソブチリルオキシ)-1-イソプロピル-2, 2-ジメチルプロピルフタレート、ミリスチルベンジルフタレート、ジブチルフタレート、ジイソブチルフタレート、ジヘプチルフタレート、ジ-(2-エチルヘキシル)フタレート、ジ-n-オクチルフタレート、ジノニルフタレート、ジイソノニルフタレート、ジイソデシルフタレート、ジウンデシルフタレート、ジトリデシルフタレート、ジシクロヘキシルフタレート、ジフェニルフタレート等のフタル酸エステル系可塑剤、ジ-(2-エチルヘキシル)イソフタレート、ジイソオクチルイソフタレート等のイソフタル酸エステル類、ジ-2-エチルヘキシルテトラヒドロフタレート等のテトラヒドロフタル酸エステル類、ジ-(2-エチルヘキシル)アジペート、ジブトキシエチルアジペート、ジイソノニルアジペート等のアジピン酸エステル類、ジ-n-ヘキシルアゼレート、ジ-(2-エチルヘキシル)アゼレート等のアゼライン酸エステル類、ジ-n-ブチルセバケート等のセバシン酸エステル類、ジ-n-ブチルマレエート、ジ-(2-エチルヘキシル)マレエート等のマレイン酸エステル類、ジ-n-ブチルフマレート、ジ-(2-エチルヘキシル)フマレ

ート等のフマル酸エステル類、トリー（２－エチルヘキシル）トリメリテート、トリー n －オクチルトリメリテート、トリー n －オクチルトリメリテート等のトリメリット酸エステル類、テトラ（２－エチルヘキシル）ピロメリチート、テトラ n －オクチルピロメリテート等のピロメリット酸エステル類、トリー n －ブチルシトレート、アセチルトリブチルシトレート等のクエン酸エステル類、ジメチルイタコネート、ジエチルイタコネート、ジブチルイタコネート、ジー（２－エチルヘキシル）イタコネート等のイタコン酸エステル類、グリセリンモノリシノレート、ジエチレングリコールモノリシノレート等のリシノール酸誘導体、グリセリンモノステアレート、ジエチレングリコールジステアレート等のステアリン酸エステル類、ジエチレングリコールジペラルゴネート、ペンタエリスリトール脂肪酸エステル等のその他脂肪酸エステル類、トリブトキシエチルホスフェート、トリフェニルホスフェート、トリクレジルホスフェート、ジフェニルデシルホスフェート、ジフェニルオクチルホスフェート等のリン酸エステル類が挙げられる。上記他の可塑剤は、一種単独で使用してもよく、二種以上を併用してもよい。

[0070] 上記可塑剤の好ましい配合量は、前記（Ａ）ポリエステル樹脂と（Ｂ１）末端修飾ポリエチレンテレフタレートまたは（Ｂ２）末端修飾ポリブチレンテレフタレートから一般式（１）で表される基を除いた残部との合計１００質量部に対して、０．１～２０質量部であり、より好ましくは、０．５～１５質量部、さらにより好ましくは１～１０質量部、最も好ましくは１～５質量部である。０．１質量部より少ないと効果が充分でない場合があり、２０質量部を超えると可塑剤がブリードアウトする場合がある。

[0071] 本発明においては、さらに無機充填剤を使用することができる。無機充填剤の使用は、成形品に対して、力学的強度等の剛性を付与したり、異方性や反りが少ない成形品にしたり、ポリエステル樹脂組成物の溶融加工時に、流動性を調節することができる。無機充填剤は、従来の熱可塑性樹脂の補強用に使用されているものの中から、目的に応じて適宜選択すればよい。

[0072] 上記無機充填剤としては、例えば、タルク、マイカ、炭酸カルシウム、酸

化カルシウム、水酸化カルシウム、炭酸マグネシウム、水酸化マグネシウム、酸化マグネシウム、硫酸マグネシウム、水酸化アルミニウム、硫酸バリウム、ガラス粉末、ガラス繊維、クレー、ドロマイト、マイカ、シリカ、アルミナ、チタン酸カリウムウィスカー、ワラストナイト、繊維状マグネシウムオキシサルフェート等が挙げられ、平均粒径（球状乃至平板状のもの）又は平均繊維径（針状乃至繊維状）が5 μ m以下のものが好ましい。

[0073] 成形品に力学的強度等の剛性を付与するためには、繊維状形状の無機充填剤が好ましく使用され、特に、ガラス繊維が好ましい。また、異方性や反りが少ない成形品とするためには、板状物の形状の無機充填剤が好ましく、特に、マイカ、ガラスフレーク等が好ましく使用される。また、粒状の無機充填剤は、成形品製造時の流動性の調整に好ましく用いられる。

[0074] 上記無機充填剤の配合量は、前記（A）ポリエステル樹脂と（B1）末端修飾ポリエチレンテレフタレートまたは（B2）末端修飾ポリブチレンテレフタレートから一般式（1）で表される基を除いた残部との合計100質量部に対して、0.01～400質量部であり、得られる成形品の力学的強度、剛性、収縮異方性、表面特性の点から、好ましくは1～300質量部、より好ましくは、5～200質量部、さらに好ましくは、10～50質量部である。0.01質量部より少ないと、成形品に対して力学的強度や剛性が向上しない場合があり、400質量部を超えると、表面荒れなどによって成形品の外観を損なう場合がある。

[0075] 上記無機充填剤は、ポリエステル樹脂との界面で親和性、接着性を改良する目的で、予め表面処理剤で処理してあるものも用いることができる。表面処理剤は、例えば、アミノシラン化合物、エポキシ樹脂の一種以上を含む表面処理剤が好ましく用いられる。

[0076] 上記アミノシラン化合物としては、例えば、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリメトキシシラン及び γ -(2-アミノエチル)アミノプロピルトリメトキシシラン等が挙げられる。

[0077] 上記表面処理剤に含有するエポキシ樹脂としては、例えば、ノボラック型

エポキシ樹脂、ビスフェノール型エポキシ樹脂に大別されるが、ノボラック型エポキシ樹脂が好ましく用いられる。ノボラック型エポキシ樹脂としては、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、クレゾールノボラック型エポキシ樹脂等の多官能型エポキシ樹脂が挙げられる。

[0078] また表面処理剤には、上記アミノシラン化合物、エポキシ樹脂の他に、性質を阻害しない範囲で、ウレタン樹脂、アクリル樹脂、耐電防止剤、潤滑剤、及び撥水剤等の成分を配合してもよい。さらに、他の表面処理剤として、ノボラック型及びビスフェノール型以外のエポキシ樹脂、カップリング剤等が挙げられる。

[0079] 上記フェノール系酸化防止剤としては、例えば、2, 6-ジ-*t*-ブチル-4-エチルフェノール、2-*t*-ブチル-4, 6-ジメチルフェノール、スチレン化フェノール、2, 2'-メチレンビス(4-エチル-6-*t*-ブチルフェノール)、2, 2'-チオビス-(6-*t*-ブチル-4-メチルフェノール)、2, 2'-チオジエチレンビス[3-(3, 5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、2-メチル-4, 6-ビス(オクチルスルファニルメチル)フェノール、2, 2'-イソブチリデンビス(4, 6-ジメチルフェノール)、イソオクチル-3-(3, 5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、*N*, *N*'-ヘキサソ-1, 6-ジイルビス[3-(3, 5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオンアミド]、2, 2'-オキサミド-ビス[エチル-3-(3, 5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、2-エチルヘキシル-3-(3', 5'-ジ-*t*-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、2, 2'-エチレンビス(4, 6-ジ-*t*-ブチルフェノール)、3, 5-ビス(1, 1-ジメチルエチル)-4-ヒドロキシ-ベンゼンプロパン酸及びC₁₃-C₁₅アルキルのエステル、2, 5-ジ-*t*-アミルヒドロキノン、ヒンダードフェノールの重合体(アデカパルマロマール社製商品名A O. OH998)、2, 2'-メチレンビス[6-(1-メチルシクロヘキシル)-*p*-クレゾール]、2-*t*-ブチル-6

- (3-t-ブチル-2-ヒドロキシ-5-メチルベンジル) -4-メチル
 フェニルアクリレート、2-[1-(2-ヒドロキシ-3,5-ジ-t-ペンチルフェニル)エチル]-4,6-ジ-t-ペンチルフェニルアクリレ
 ート、6-[3-(3-t-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチル)プロポキシ]-2,4,8,10-テトラ-t-ブチルベンズ[d,f][1,3,
 2]-ジオキホスフォビン、ヘキサメチレンビス[3-(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、ビス[モノエチル(3,
 5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)ホスホネートカルシウム
 塩、5,7-ビス(1,1-ジメチルエチル)-3-ヒドロキシ-2(3H)
)-ベンゾフラノン、とo-キシレンとの反応生成物、2,6-ジ-t-ブ
 チル-4-(4,6-ビス(オクチルチオ)-1,3,5-トリアジン-2
 -イルアミノ)フェノール、DL-a-トコフェノール(ビタミンE)、2,
 6-ビス(α -メチルベンジル)-4-メチルフェノール、ビス[3,3
 -ビス-(4'-ヒドロキシ-3'-t-ブチルフェニル)ブタン酸]グ
 リコールエステル、2,6-ジ-t-ブチル-p-クレゾール、2,6-ジ
 フェニル-4-オクタデシロキシフェノール、ステアリル(3,5-ジ-t
 -ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート、ジステアリル(3,
 5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)ホスホネート、トリデシル
 -3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシベンジルチオアセテート、チオ
 ジエチレンビス[(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プ
 ロピオネート]、4,4'-チオビス(6-t-ブチル-m-クレゾール)
 、2-オクチルチオ-4,6-ジ(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキ
 シフェノキシ)-s-トリアジン、2,2'-メチレンビス(4-メチル-
 6-t-ブチルフェノール)、ビス[3,3-ビス(4-ヒドロキシ-3-
 t-ブチルフェニル)ブチリックアシッド]グリコールエステル、4,4'
 -ブチリデンビス(2,6-ジ-t-ブチルフェノール)、4,4'-ブチ
 リデンビス(6-t-ブチル-3-メチルフェノール)、2,2'-エチリ
 デンビス(4,6-ジ-t-ブチルフェノール)、1,1,3-トリス(2

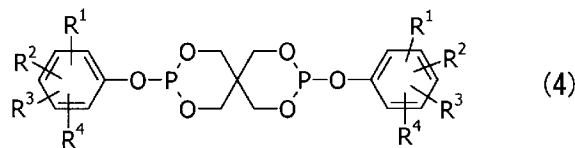
ーメチルー4ーヒドロキシー5ー t ーブチルフェニル) ブタン、ビス [2ー t ーブチルー4ーメチルー6ー(2ーヒドロキシー3ー t ーブチルー5ーメチルベンジル) フェニル] テレフタレート、1, 3, 5ートリス (2, 6ージメチルー3ーヒドロキシー4ー t ーブチルベンジル) イソシアヌレート、1, 3, 5ートリス (3, 5ージー t ーブチルー4ーヒドロキシベンジル) イソシアヌレート、1, 3, 5ートリス (3, 5ージー t ーブチルー4ーヒドロキシベンジル) ー2, 4, 6ートリメチルベンゼン、1, 3, 5ートリス [(3, 5ージー t ーブチルー4ーヒドロキシフェニル) プロピオニルオキシエチル] イソシアヌレート、テトラキス [メチレンー3ー(3', 5'ージー t ーブチルー4'ーヒドロキシフェニル) プロピオネート] メタン、2ー t ーブチルー4ーメチルー6ー(2ーアクロイルオキシー3ー t ーブチルー5ーメチルベンジル) フェノール、3, 9ービス [2ー(3ー t ーブチルー4ーヒドロキシー5ーメチルヒドロシナモイルオキシ) ー1, 1ージメチルエチル] ー2, 4, 8, 10ーテトラオキサスピロ [5. 5] ウンデカン、トリエチレングリコールビス [β ー(3ー t ーブチルー4ーヒドロキシー5ーメチルフェニル) プロピオネート] が挙げられる。

上記フェノール系酸化防止剤の使用量は、前記 (A) ポリエステル樹脂と (B 1) 末端修飾ポリエチレンテレフタレートまたは (B 2) 末端修飾ポリブチレンテレフタレートから一般式 (1) で表される基を除いた残部との合計 100 質量部に対して、0. 001~10 質量部、より好ましくは 0. 01~5 質量部である。

[0080] 上記リン系酸化防止剤としては、例えば、トリフェニルホスファイト、ジイソオクチルホスファイト、ヘプタキストリホスファイト、トリイソデシルホスファイト、ジフェニルイソオクチルホスファイト、ジイソオクチルオクチルフェニルホスファイト、ジフェニルトリデシルホスファイト、トリイソオクチルホスファイト、トリラウリルホスファイト、ジフェニルホスファイト、トリス (ジプロピレングリコール) ホスファイト、ジイソデシルペンタエリスリトールジホスファイト、ジオレイルヒドロゲンホスファイト、トリ

ラウリルトリチオホスファイト、ビス（トリデシル）ホスファイト、トリス（イソデシル）ホスファイト、トリス（トリデシル）ホスファイト、ジフェニルデシルホスファイト、ジノニルフェニルビス（ノニルフェニル）ホスファイト、ポリ（ジプロピレングリコール）フェニルホスファイト、テトラフェニルジプロピルグリコールジホスファイト、トリスノニルフェニルホスファイト、トリス（2，4-ジ-tert-ブチルフェニル）ホスファイト、トリス（2，4-ジ-tert-ブチル-5-メチルフェニル）ホスファイト、トリス〔2-tert-ブチル-4-（3-tert-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルフェニルチオ）-5-メチルフェニル〕ホスファイト、トリデシルホスファイト、オクチルジフェニルホスファイト、ジ（デシル）モノフェニルホスファイト、ジステアリルペンタエリスリトールジホスファイト、ジステアリルペンタエリスリトールとステアリン酸カルシウム塩との混合物、アルキル（C10）ビスフェノールAホスファイト、ジ（トリデシル）ペンタエリスリトールジホスファイト、ジ（ノニルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス（2，4-ジ-tert-ブチルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス（2，6-ジ-tert-ブチル-4-メチルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス（2，4，6-トリ-tert-ブチルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイト、ビス（2，4-ジクミルフェニル）ペンタエリスリトールジホスファイト、テトラフェニル-テトラ（トリデシル）ペンタエリスリトールテトラホスファイト、ビス（2，4-ジ-tert-ブチル-6-メチルフェニル）エチルホスファイト、テトラ（トリデシル）イソプロピリデンジフェノールジホスファイト、テトラ（トリデシル）-4，4'-n-ブチリデンビス（2-tert-ブチル-5-メチルフェノール）ジホスファイト、ヘキサ（トリデシル）-1，1，3-トリス（2-メチル-4-ヒドロキシ-5-tert-ブチルフェニル）ブタントリホスファイト、テトラキス（2，4-ジ-tert-ブチルフェニル）ビフェニレンジホスホナイト、9，10-ジハイドロ-9-オキサ-10-ホスファフェナンスレン-10-オキサイド、（1-メチル-1-プロパニル-3-イリデン）トリス

(2-1, 1-ジメチルエチル) - 5-メチル-4, 1-フェニレン) ヘキサトリデシルホスファイト、2, 2'-メチレンビス(4, 6-t-ブチルフェニル) - 2-エチルヘキシルホスファイト、2, 2'-メチレンビス(4, 6-ジ-t-ブチルフェニル) - オクタデシルホスファイト、2, 2'-エチリデンビス(4, 6-ジ-t-ブチルフェニル) フルオロホスファイト、4, 4'-ブチリデンビス(3-メチル-6-t-ブチルフェニルジトリデシル) ホスファイト、トリス(2-[(2, 4, 8, 10-テトラキサー-t-ブチルジベンゾ[d, f][1, 3, 2]ジオキサホスフェピン-6-イル)オキシ]エチル)アミン、3, 9-ビス(4-ノニルフェノキシ)-2, 4, 8, 10-テトラオキサ-3, 9-ジホスフェススピロ[5, 5]ウンデカン、2, 4, 6-トリ-t-ブチルフェニル-2-ブチル-2エチル-1, 3-プロパンジオールホスファイト、ポリ4, 4'-イソプロピリデンジフェノールC12-15アルコールホスファイト、2-エチル-2-ブチルプロピレングリコールと2, 4, 6-トリ-t-ブチルフェノールのホスファイト等が挙げられるが、下記一般式(4)、



(一般式(4)中、R¹、R²、R³及びR⁴は、各々独立して、水素原子、分岐を有してもよい炭素原子数1~8のアルキル基、置換されていてもよい炭素原子数6~12のアリール基又は炭素原子数7~12のアラルキル基を表す)で表されるリン系酸化防止剤は、成形加工時の着色防止効果が特に優れるので好ましい。

[0081] 上記リン系酸化防止剤の使用量は、前記(A)ポリエステル樹脂と(B1)末端修飾ポリエチレンテレフタレートまたは(B2)末端修飾ポリブチレンテレフタレートから一般式(1)で表される基を除いた残部との合計100質量部に対して、0.001~10質量部、より好ましくは0.01~5質量部である。0.001質量部以下では、ポリエステル樹脂組成物が充分

な安定化効果を得られない場合があり、10質量部を超えると、樹脂中への分散が低下したり、成形品の外観に悪影響を与える場合がある。

[0082] 上記一般式(4)中における R^1 、 R^2 、 R^3 及び R^4 で表される炭素原子数1~8のアルキル基としては、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル、第二ブチル、第三ブチル、イソブチル、アミル、イソアミル、第三アミル、ヘキシル、シクロヘキシル、ヘプチル、イソヘプチル、第三ヘプチル、 n -オクチル、イソオクチル、第三オクチル、2-エチルヘキシルトリフルオロメチル等が挙げられる。また、これらの基中の水素原子がハロゲン原子、飽和脂環、芳香族環等で置換されていてもよい。また、上記置換されてもよい炭素原子数6~12のアリール基としては、フェニル基、ナフチル基等が挙げられ、炭素原子数6~12のアラルキル基としては、上記アルキル基の水素原子をアリール基で置換したものが挙げられる。

[0083] 上記チオエーテル系酸化防止剤としては、例えば、テトラキス[メチレン-3-(ラウリルチオ)プロピオネート]メタン、ビス(メチル-4-[3- n -アルキル(C12/C14)チオプロピオニルオキシ]5- t -ブチルフェニル)スルファイド、ジトリデシル-3,3'-チオジプロピオネート、ジラウリル-3,3'-チオジプロピオネート、ジミリスチル-3,3'-チオジプロピオネート、ジステアリル-3,3'-チオジプロピオネート、ラウリル/ステアリルチオジプロピオネート、4,4'-チオビス(6- t -ブチル- m -クレゾール)、2,2'-チオビス(6- t -ブチル- p -クレゾール)、ジステアリルジサルファイドが挙げられる。

チオエーテル系酸化防止剤の使用量は、好ましくは、前記(A)ポリエステル樹脂と(B1)末端修飾ポリエチレンテレフタレートまたは(B2)末端修飾ポリブチレンテレフタレートから一般式(1)で表される基を除いた残部との合計100質量部に対して、0.01~0.3質量部である。

[0084] 上記紫外線吸収剤としては、例えば、2,4-ジヒドロキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-オクトキシベンゾフェノン、5,5'-メチレンビス(2-ヒドロキシ-4

ーメトキシベンゾフェノン)等の2-ヒドロキシベンゾフェノン類; 2-(2-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2-ヒドロキシ-5-第三オクチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2-ヒドロキシ-3, 5-ジ第三ブチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(2-ヒドロキシ-3-第三ブチル-5-メチルフェニル)-5-クロロベンゾトリアゾール、2-(2-ヒドロキシ-3, 5-ジクミルフェニル)ベンゾトリアゾール、2, 2'-メチレンビス(4-第三オクチル-6-ベンゾトリアゾリルフェノール)、2-(2-ヒドロキシ-3-第三ブチル-5-カルボキシフェニル)ベンゾトリアゾールのポリエチレングリコールエステル、2-[2-ヒドロキシ-3-(2-アクリロイルオキシエチル)-5-メチルフェニル]ベンゾトリアゾール、2-[2-ヒドロキシ-3-(2-メタクリロイルオキシエチル)-5-第三ブチルフェニル]ベンゾトリアゾール、2-[2-ヒドロキシ-3-(2-メタクリロイルオキシエチル)-5-第三オクチルフェニル]ベンゾトリアゾール、2-[2-ヒドロキシ-3-(2-メタクリロイルオキシエチル)-5-第三ブチルフェニル]-5-クロロベンゾトリアゾール、2-[2-ヒドロキシ-5-(2-メタクリロイルオキシエチル)フェニル]ベンゾトリアゾール、2-[2-ヒドロキシ-3-第三ブチル-5-(2-メタクリロイルオキシエチル)フェニル]ベンゾトリアゾール、2-[2-ヒドロキシ-3-第三アミル-5-(2-メタクリロイルオキシエチル)フェニル]ベンゾトリアゾール、2-[2-ヒドロキシ-3-第三ブチル-5-(3-メタクリロイルオキシプロピル)フェニル]-5-クロロベンゾトリアゾール、2-[2-ヒドロキシ-4-(2-メタクリロイルオキシメチル)フェニル]ベンゾトリアゾール、2-[2-ヒドロキシ-4-(3-メタクリロイルオキシ-2-ヒドロキシプロピル)フェニル]ベンゾトリアゾール、2-[2-ヒドロキシ-4-(3-メタクリロイルオキシプロピル)フェニル]ベンゾトリアゾール等の2-(2-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール類; 2-(2-ヒドロキシ-4-メトキシフェニル)-4, 6-ジフェニル-1, 3, 5-ト

リアジン、2-(2-ヒドロキシ-4-ヘキシロキシフェニル)-4,6-ジフェニル-1,3,5-トリアジン、2-(2-ヒドロキシ-4-オクトキシフェニル)-4,6-ビス(2,4-ジメチルフェニル)-1,3,5-トリアジン、2-[2-ヒドロキシ-4-(3-C12~13混合アルコキシ-2-ヒドロキシプロポキシ)フェニル]-4,6-ビス(2,4-ジメチルフェニル)-1,3,5-トリアジン、2-[2-ヒドロキシ-4-(2-アクリロイルオキシエトキシ)フェニル]-4,6-ビス(4-メチルフェニル)-1,3,5-トリアジン、2-(2,4-ジヒドロキシ-3-アリルフェニル)-4,6-ビス(2,4-ジメチルフェニル)-1,3,5-トリアジン、2,4,6-トリス(2-ヒドロキシ-3-メチル-4-ヘキシロキシフェニル)-1,3,5-トリアジン等の2-(2-ヒドロキシフェニル)-4,6-ジアリール-1,3,5-トリアジン類；フェニルサリシレート、レゾルシノールモノベンゾエート、2,4-ジ第三ブチルフェニル-3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシベンゾエート、オクチル(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシ)ベンゾエート、ドデシル(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシ)ベンゾエート、テトラデシル(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシ)ベンゾエート、ヘキサデシル(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシ)ベンゾエート、オクタデシル(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシ)ベンゾエート、ベヘニル(3,5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシ)ベンゾエート等のベンゾエート類；2-エチル-2'-エトキシオキサニリド、2-エトキシ-4'-ドデシルオキサニリド等の置換オキサニリド類；エチル- α -シアノ- β , β -ジフェニルアクリレート、メチル-2-シアノ-3-メチル-3-(p-メトキシフェニル)アクリレート等のシアノアクリレート類；各種の金属塩、又は金属キレート、特にニッケル、クロムの塩、又はキレート類等が挙げられる。

上記紫外線吸収剤の使用量は、前記(A)ポリエステル樹脂と(B1)末端修飾ポリエチレンテレフタレートまたは(B2)末端修飾ポリブチレンテレフタレートから一般式(1)で表される基を除いた残部との合計100質

量部に対して、0.001～5質量部、より好ましくは0.005～0.5質量部である。

[0085] 上記ヒンダードアミン系光安定剤としては、例えば、2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジルステアレート、1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジルステアレート、2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジルベンゾエート、ビス(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル)セバケート、テトラキス(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル)-1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボキシレート、テトラキス(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル)-1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボキシレート、ビス(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル)・ジ(トリデシル)-1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボキシレート、ビス(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル)・ジ(トリデシル)-1, 2, 3, 4-ブタンテトラカルボキシレート、ビス(1, 2, 2, 4, 4-ペンタメチル-4-ピペリジル)-2-ブチル-2-(3, 5-ジ第三ブチル-4-ヒドロキシベンジル)マロネート、1-(2-ヒドロキシエチル)-2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジノール/コハク酸ジエチル重縮合物、1, 6-ビス(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジルアミノ)ヘキサン/2, 4-ジクロロ-6-モルホリノ-s-トリアジン重縮合物、1, 6-ビス(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジルアミノ)ヘキサン/2, 4-ジクロロ-6-第三オクチルアミノ-s-トリアジン重縮合物、1, 5, 8, 12-テトラキス〔2, 4-ビス(N-ブチル-N-(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル)アミノ)-s-トリアジン-6-イル〕-1, 5, 8, 12-テトラアザドデカン、1, 5, 8, 12-テトラキス〔2, 4-ビス(N-ブチル-N-(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル)アミノ)-s-トリアジン-6-イル〕-1, 5, 8-12-テトラアザドデカン、1, 6, 11-トリス〔2, 4-ビス(N-ブチル-N-(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル)アミノ)-s-トリアジン-6-イ

ル] アミノウンデカン、1, 6, 11-トリス [2, 4-ビス (N-ブチル-N-(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル) アミノ) -s-トリアジン-6-イル] アミノウンデカン、ビス {4-(1-オクチルオキシ-2, 2, 6, 6-テトラメチル) ピペリジル} デカンジオナート、ビス {4-(2, 2, 6, 6-テトラメチル-1-ウンデシルオキシ) ピペリジル} カーボナート、チバ社製商品名: TINUVIN NOR 371 等が挙げられる。

上記ヒンダードアミン系光安定剤の使用量は、前記 (A) ポリエステル樹脂と (B1) 末端修飾ポリエチレンテレフタレートまたは (B2) 末端修飾ポリブチレンテレフタレートから一般式 (1) で表される基を除いた残部との合計100質量部に対して、0.001~5質量部、より好ましくは0.005~0.5質量部である。

[0086] 上記その他の結晶核剤としては、例えば、カーボンブラック、グラファイト、亜鉛粉末、アルミニウム粉末等の単体物；酸化亜鉛、酸化マグネシウム、アルミナ、ヘマタイト、マグネタイト等の金属酸化物；タルク、アスベスト、カオリン、モンモリロナイト、クレー、ピロフィライト等の粘土・鉱石類、硫酸カルシウム、硫酸バリウム等の硫酸塩；リン酸カルシウム等の無機リン酸塩；芳香族オキシスルホン酸の金属塩、有機リン化合物のマグネシウム塩、有機リン化合物の亜鉛塩等の有機リン酸塩；珪酸カルシウム塩、珪酸マグネシウム塩等の無機珪酸塩；モノカルボン酸ナトリウム塩、モノカルボン酸リチウム塩、モノカルボン酸バリウム塩、モノカルボン酸マグネシウム塩、モノカルボン酸カルシウム塩、ステアリン酸ナトリウム、モンタン酸ナトリウム、モンタン酸カルシウム、安息香酸ナトリウム、安息香酸カリウム、安息香酸カルシウム、4-第三ブチル安息香酸アルミニウム塩、アジピン酸ナトリウム及び2ナトリウムビスクロ [2, 2, 1] ヘプタン-2, 3-ジカルボキシレート、炭酸ナトリウム、炭酸マグネシウム等のカルボン酸金属塩；ナトリウムビス (4-第三ブチルフェニル) ホスフェート、ナトリウム-2, 2'-メチレンビス (4, 6-ジ第三ブチルフェニル) ホスフェー

ト及びリチウム-2, 2'-メチレンビス(4, 6-ジ第三ブチルフェニル)ホスフェート等のリン酸エステル金属塩; ジベンジリデンソルビトール、ビス(メチルベンジリデン)ソルビトール、ビス(p-エチルベンジリデン)ソルビトール、及びビス(ジメチルベンジリデン)ソルビトール等の多価アルコール誘導体; N, N', N''-トリス[2-メチルシクロヘキシル]-1, 2, 3-プロパントリカルボキサミド、N, N', N''-トリシクロヘキシル-1, 3, 5-ベンゼントリカルボキサミド、N, N'-ジシクロヘキシル-ナフタレンジカルボキサミド、1, 3, 5-トリス(2, 2-ジメチルプロピオニルアミノ)ベンゼン等のアミド化合物; ポリカプロラクトン、ポリグリコール、ポリオレフィン、ナイロン6、ポリテトラフルオロエチレン粉末、高融点ポリエステル樹脂、ポリエステルオリゴマー及びそのアルカリ金属塩等の高分子物質等が挙げられる。

上記その他の結晶核剤の使用量は、前記(A)ポリエステル樹脂と(B1)末端修飾ポリエチレンテレフタレートまたは(B2)末端修飾ポリブチレンテレフタレートから一般式(1)で表される基を除いた残部との合計100質量部に対して、本発明で用いられる結晶核剤との合計量が、0.001~1質量部となるように用いられる。

[0087] 上記難燃剤としては、例えば、トリフェニルホスフェート、トリクレジルホスフェート、トリキシレニルホスフェート、クレジルジフェニルホスフェート、クレジル-2, 6-キシレニルホスフェート及びレゾルシノールビス(ジフェニルホスフェート)等の芳香族リン酸エステル、フェニルホスホン酸ジビニル、フェニルホスホン酸ジアリル及びフェニルホスホン酸(1-ブテニル)等のホスホン酸エステル、ジフェニルホスフィン酸フェニル、ジフェニルホスフィン酸メチル、9, 10-ジヒドロ-9-オキサ-10-ホスファフェナントレン-10-オキシド誘導体等のホスフィン酸エステル、ビス(2-アリルフェノキシ)ホスファゼン、ジクレジルホスファゼン等のホスファゼン化合物、リン酸メラミン、ピロリン酸メラミン、ポリリン酸メラミン、ポリリン酸メラム、ポリリン酸アンモニウム、リン含有ビニルベンジ

ル化合物及び赤リン等のリン系難燃剤、水酸化マグネシウム、水酸化アルミニウム等の金属水酸化物、臭素化ビスフェノールA型エポキシ樹脂、臭素化フェノールノボラック型エポキシ樹脂、ヘキサブロモベンゼン、ペンタブロモトルエン、エチレンビス（ペンタブロモフェニル）、エチレンビステトラブロモフタルイミド、1，2-ジブロモ-4-（1，2-ジブロモエチル）シクロヘキサン、テトラブロモシクロオクタン、ヘキサブロモシクロドデカン、ビス（トリブロモフェノキシ）エタン、臭素化ポリフェニレンエーテル、臭素化ポリスチレン及び2，4，6-トリス（トリブロモフェノキシ）-1，3，5-トリアジン、トリブロモフェニルマレイミド、トリブロモフェニルアクリレート、トリブロモフェニルメタクリレート、テトラブロモビスフェノールA型ジメタクリレート、ペンタブロモベンジルアクリレート、及び、臭素化スチレン等の臭素系難燃剤等が挙げられる。

上記難燃剤の使用量は、前記（A）ポリエステル樹脂と（B1）末端修飾ポリエチレンテレフタレートまたは（B2）末端修飾ポリブチレンテレフタレートから一般式（1）で表される基を除いた残部との合計100質量部に対して、1～70質量部、より好ましくは、10～30質量部である。

[0088] 上記滑剤は、成形体表面に滑性を付与し傷つき防止効果を高める目的で加えられる。滑剤としては、例えば、オレイン酸アミド、エルカ酸アミド等の不飽和脂肪酸アミド；ベヘン酸アミド、ステアリン酸アミド等の飽和脂肪酸アミド等が挙げられる。これらは1種を使用してもよく、2種以上を併用して用いてもよい。

上記滑剤の添加量は、前記（A）ポリエステル樹脂と（B1）末端修飾ポリエチレンテレフタレートまたは（B2）末端修飾ポリブチレンテレフタレートから一般式（1）で表される基を除いた残部との合計100質量部に対し、0.03～2質量部、より好ましくは0.04～1質量部の範囲である。0.03質量部未満では、所望の滑性が得られない場合があり、2質量部を超えると滑剤成分が成形品表面にブリードしたり、物性低下の原因となる場合がある。

[0089] 上記帯電防止剤は、成形体の帯電性の低減化や、帯電による埃の付着防止の目的で加えられる。帯電防止剤としては、カチオン系帯電防止剤、アニオン系帯電防止剤、非イオン系帯電防止剤等が挙げられる。好ましい例としては、ポリオキシエチレンアルキルアミンやポリオキシエチレンアルキルアミドないしそれらの脂肪酸エステル、グリセリンの脂肪酸エステル等が挙げられる。これらは1種を用いてもよく、2種以上を併用して用いてもよい。また、帯電防止剤の添加量は、前記(A) ポリエステル樹脂と(B1) 末端修飾ポリエチレンテレフタレートまたは(B2) 末端修飾ポリブチレンテレフタレートから一般式(1)で表される基を除いた残部との合計100質量部に対し、好ましくは0.03~2質量部、より好ましくは0.04~1質量部である。帯電防止剤が過少の場合、帯電防止効果が不足し、一方過多であると、表面へのブリード、物性低下を引き起こす場合がある。

[0090] また、本発明のポリエステル樹脂組成物には、離型剤を配合することができる。離型剤は、成形品の金型からの離型性を向上し、逆テーパ面のキャビティを有する金型でも成形品を離型することを可能にするものが好ましい。具体的には、ポリエチレン系ワックスや低分子量ポリプロピレン等が挙げられ、単独であるいは併用して使用することができる。ここでポリエチレン系ワックスとは、分子量が500~10000程度の低分子量ポリエチレンである。

離型剤の添加量は、前記(A) ポリエステル樹脂と(B1) 末端修飾ポリエチレンテレフタレートまたは(B2) 末端修飾ポリブチレンテレフタレートから一般式(1)で表される基を除いた残部との合計100質量部に対し、0.1~1質量部が好ましい。

[0091] 本発明のポリエステル樹脂組成物は、公知の成形方法や成形装置を用いて成形することができる。例えば、押出成形、射出成形、中空成形、ブロー成形、カレンダー成形、圧縮成形等の任意の成形方法によって成形ことができ、シート、フィルム、装置ハウジング、食品用容器、化粧品用容器、瓶、タンク等の容器、食品用ボトル、飲料用ボトル、食用油ボトル、調味料ボ

トル等のボトル、食品用包装材、ラッピング材、輸送用包装材等の包装材料、電子材料の保護膜、電化製品の保護シート等のシート・フィルム、日用雑貨、玩具、繊維材料等に用いることができる。また、特に（B2）末端修飾ポリブチレンテレフタレートを用いたポリエステル樹脂組成物は、電機部品、電子部品、機械機構部品、ライト部品、コネクタ、イグニッションコイル、エアバック用通電部品等の自動車電装品、ギア、ドアロックハウジング、排気関係製品等の自動車機構部品、ワイパーアーム、ドアミラーステイ、ヘッドライトハウジング、サンルーフリム、フレーム、インストルメントパネル、スポイラーパネル、ダッシュボードパネル、リアウィンドーパネル、外装エアスポイラー、シートの背部、ウィンドデフレクター、バンパー等の衝撃吸収部材等の自動車内外装品、フェアリング、パイプ等に用いることもできる。

[0092] 本発明の成形体は延伸してもよく、延伸方法としては、予備成形した後、一軸又は二軸にて延伸方向に伸長させるように応力を付与して延伸すること、又は筒型（ボトル容器）に延伸したものが挙げられる。延伸は通常、80～200℃の温度範囲で行われる。

[0093] 加熱方法は特に制限なく成形体の全体を均一に加熱できるものが好ましいが、一部分あるいは複数の部分を加熱するものであってもよい。

[0094] また、特に（B2）末端修飾ポリブチレンテレフタレートを用いたポリエステル樹脂組成物の場合、上記成形品はアニール処理によって結晶性を改善させることが可能であり、成形品をポリブチレンテレフタレートのガラス転移温度以上融点以下の温度で加熱することにより、成形品の結晶性を改善することができる。

[0095] 本発明のポリエステル樹脂組成物を繊維材料に用いる場合、ポリエステル樹脂組成物を溶融して延伸すればよく、特に延伸配向させた繊維が好ましい。延伸方法は、公知の延伸方法を用いることができ、繊維が切れない範囲で延伸比率を定めることができる。

[0096] 繊維は、公知の方法で撚糸、接着剤処理、熱処理、アルカリ処理を施すこ

とができ、上記撚糸は、ポリエステル繊維以外の他の繊維材料と撚糸してもよい。他の繊維材料としては、ポリエステル繊維と絡みやすく、繊維の折れが少ないものが好ましく用いられる。

[0097] 上記繊維は、車両用タイヤ構造体、印刷用基材、壁紙用基材、ワイピング材、各種フィルター材、湿布材、生理用品等の医療衛生材、衣料、衣料用芯地、枕カバー、化粧用基材、自動車用内装材、吸音材、包装材、土木などの産業資材等の用途に利用することができる。

[0098] 本発明のポリエステル樹脂組成物を押出成形法で成形する場合は、窒素ガスなどの不活性ガスを押出機内に供給しながら、スクリュ部温度をポリエチレンテレフタレートの融点プラス50℃以内にするのが好ましい。スクリュ部温度が低すぎるとショートが発生して成形が不安定になったり、過負荷に陥りやすく、またスクリュ部温度が高すぎると樹脂が熱分解し、得られる成形品の物性が低下したり、着色したりする場合があるため、好ましくない。

[0099] 本発明のポリエステル樹脂組成物を、プラスチックボトルに成形する場合は、各種ブロー成形法を用いることができる。ブロー成形法としては、特に限定されないが、押出成形でプリフォームを成形後にブロー成形を行うダイレクトブロー法や、射出成形でプリフォーム（パリソン）を成形後にブロー成形を行う射出ブロー成形法などが挙げられる。

後者の射出ブロー成形法としては、プリフォーム成形後に連続してブロー成形を行うホットパリソン法（1ステージ法）や、いったんプリフォームを冷却し取り出してから再度加熱してブロー成形を行うコールドパリソン法（2ステージ法）のいずれの方法も採用できる。

[0100] 前記プリフォームは、単層のポリエステル樹脂の層で構成される場合の他に、二層以上のポリエステル樹脂の層で構成することができるほか、二層以上のポリエステル樹脂の層からなる内層および外層に、中間層を挿入することができる、中間層をバリアー層や酸素吸収層とすることができる。

[0101] 前記バリアー層とは、プラスチックボトルへの外部からの酸素の透過を抑

制し、内容物の変質を防止するものがあげられ、特に炭酸ガス入り飲料用のプラスチックボトルに好適である。

[0102] 前記酸素吸収層は、酸素を吸収し、プラスチックボトル内で酸素の透過を防ぐものであり、酸化可能な有機物又は遷移金属触媒、又は実質的に酸化しないガスバリアー性の高い樹脂が使用される。

[0103] 上記プリフォームにおいて、中間層に酸素吸収層を備える多層プリフォームを製造する場合は、公知の共射出成形機等をもちいて、内外層をポリエステル樹脂とし、内外層の間に、一層又は二層以上の酸素吸収層を挿入して、多層プリフォームを製造することができる本発明の製造方法において、前記プリフォームは、公知の射出成形機や押出成形機によって製造することができる。

[0104] 例えば、(B1) 末端修飾ポリエチレンテレフタレートを用いたポリエステル樹脂組成物において前記プリフォームを延伸ブローで成形する場合、プリフォームをポリエチレンテレフタレートのガラス転移点以上の温度で加熱して延伸することが好ましい。具体的には、85℃～135℃、より好ましくは、90～130℃の範囲内で延伸することができる。85℃未満の場合、プリフォームの軟化が不十分で延伸ブロー成形することができず、135℃を超えたり加熱する時間が長すぎるとプリフォームの結晶化が過度に進行して均一延伸ができなかったり、プラスチックボトルの透明性が低下したりする場合がある。

[0105] 上記延伸は、所定の温度で加熱したプリフォームを延伸ブロー成形することによって行われる。金型温度は、85～160℃、より好ましくは、90～145℃の範囲内の温度である。85℃未満では、成形品の熱収縮が著しく成形寸法が不安定になる場合があり、160℃を超えると、樹脂の熱分解が多くなり、金型に異物が付着しやすくなる場合がある。

[0106] 上記プラスチックボトルの耐熱性を向上させる為に、上記プラスチックボトルを熱処理（ヒートセット）してもよい。上記熱処理は、得られたプラスチックボトルを180～245℃、より好ましくは、200～235℃に加

熱し、金型温度を100～230℃、より好ましくは、110～200℃の温度にしてプラスチックボトルを再成形する。金型温度が100℃未満では、十分な耐熱性が得られず、230℃以上では、成形品の形状を維持できない場合がある。

[0107] また、ブロー成形における延伸倍率は、特に限定されないが、縦延伸倍率×横延伸倍率で3～14倍、好ましくは4～12倍であることが望ましい。

14倍以上にすると、過延伸によるプラスチックボトルの白化が発生する場合があります。3倍未満では、プリフォームの厚みを薄くする必要があるが、プリフォームをあまりに薄くすると均一な厚みに成形するのが困難になる。

[0108] また、プラスチックボトルのボトルネックの部分を結晶化させることにより、高温充填によるプラスチックボトルの口部の変形を防止することができる。口部の結晶化が不十分な場合、プラスチックボトルのキャッピングの際に変形したり、内容物を充填したプラスチックボトルを冷却した後に内容物が漏れたり、キャップの締め付けが緩む等の問題が生じる場合がある。口部を結晶化させる方法としては、ブロー成形の前に、またはブロー成形の後に、プリフォーム又はプラスチックボトルの口部を加熱することにより結晶化させることができる。加熱結晶化させる温度としては、160～200℃が好ましく、160～180℃の範囲がより好ましい。

[0109] また、本発明のポリエステル樹脂組成物を耐熱用途のプラスチックボトルとして成形する場合は、プラスチックボトルの密度を適切な値に設定する必要がある。密度が高すぎる場合は、プラスチックボトルの結晶化度が過度に高くなり、ブロー成形において支障をきたすおそれがあり、密度が低すぎる場合は、プラスチックボトルの加熱の際、熱変形が生じて内容物が漏れてしまうおそれがある。密度は、ポリエステル樹脂によって適宜選択される。

[0110] プラスチックボトルの具体的な使用例としては、通常のボトルの他、炭酸用ボトル、高温充填用ボトル、ホット対応ボトル、耐熱耐圧ボトル等が挙げられ、用途としては乳製品、お茶、清涼飲料、炭酸飲料、麦酒、ワイン、焼酎、日本酒などの飲料容器、醤油、食用油、サラダドレッシング、香辛料等

の調味料の保存容器、シャンプー、リンス等の洗剤容器、化粧品用容器などが挙げられる。プラスチックボトルは、容量が数m l程度の少量小瓶から5 Lを超える容量の大瓶にも採用することができる。プラスチックの厚みは、内容物を保護し得るものであればよく、通常、最も薄い部位において0. 1 mm～1 mmの範囲内が好ましい。

また、プラスチックボトルの外側表面をポリエチレン・ポリプロピレンなどのフィルムや、セラミック・シリカ等を貼り合わせたラミネートフィルムをコーティングしたボトル容器や、ボトルの内側を金属酸化物、アモルファスカーボン等で蒸着したボトル容器に利用することができる。

[0111] 上記プラスチックボトルに対してアセプティック充填システムを採用する場合、公知の方式で採用することができる。具体的には、容器滅菌セクションと無菌充填セクションの組合せからなる方式が挙げられる。

[0112] 上記容器滅菌セクションでは、プラスチックボトルの内部を温水又は過酸化水素系、過酢酸系、次亜塩素酸系、オゾン系などを含む塩素系薬剤などでプラスチックボトルを洗浄し、次に、プラスチックボトルに滅菌溶剤を注入したり、薬剤に浸漬する方法等でプラスチックボトルを滅菌し、次いでプラスチックボトルの口部を下にして、滅菌溶剤又は薬剤を排出し、エア等で残留物を除去する処理が行われる。

[0113] 上記無菌充填セクションでは、滅菌された容器に対して、内容物を無菌化したものを充填し、キャッピングする処理が行われる。内容物を無菌化する方法としては、例えば、限界ろ過法によって細菌をろ別する方法や、高温短時間殺菌法により瞬間殺菌して無菌化する方法が挙げられる。

[0114] 内容物を充填する際の上限温度としては4 0℃、より好ましくは3 0～4 0℃である。ただし、充填後に冷却工程が付加されている場合には、5 0～6 0℃の上限温度を採用することができる。

[0115] 本発明のポリエステル樹脂組成物をシート状に成形する場合、成形方法は、特に限定されず、押出成形、射出成形、中空成形、ブロー、フィルム、シート等の公知の成形方法を利用することができるが、押出成形の場合、押出

成形機の温度条件は、スクリー部温度が前記ポリエステル樹脂の融点プラス50℃以内であることが好ましい。スクリー温度が低すぎるとショートが発生して成形が不安定になったり、過負荷に陥りやすく、またスクリー部温度が高すぎると樹脂が熱分解し、得られる成形品の物性が低下したり、着色したりする可能性があるため、好ましくない。

実施例

[0116] 以下に、製造例及び実施例を挙げて、本発明を更に具体的に説明するが、本発明は以下の実施例等によって何ら制限されるものではない。

[0117] [製造例1]

3時間140℃で減圧乾燥させたポリエチレンテレフタレート樹脂（TR-8550；帝人化成（株）製）100質量部に対し、下記表1記載の試験化合物を0.3質量部混合後、単軸押出機（ラボプラスミルミュー；株式会社東洋精機製作所製）を用いて、270℃のシリンダ温度及び150rpmのスクリー速度で熔融混練して、ペレットAを得た。得られたペレットAは140℃で3時間乾燥させたものを下記の実施例、比較例に用いた。

[0118] [製造例2]

上記製造例1において、試験化合物の配合量を0.3質量部から3質量部に変更した以外は製造例1と同様に製造してペレットBを得た。

[0119] [実施例1-1、比較例1-1~4]

ポリエチレンテレフタレート（帝人化成株式会社製 TR-8550）に対し、製造例1で得られたペレットA、又は、製造例2で得られたペレットBを配合した。ペレットは、ポリエチレンテレフタレートおよびペレットAまたはBとの合計100質量部に対して、ペレットAまたはBが6.67質量部となるように配合した。ペレットを配合したポリエチレンテレフタレートを混合し、二軸押出機（装置：株式会社日本製鋼所製 TEX28V，シリンダ温度：270℃，スクリー速度：200rpm）で造粒して、ペレットを得た。但し、下記比較例1-1及び比較例1-2においては、ペレットA及びペレットBを添加せずに二軸押出機で造粒してペレットを得た。

[0120] 得られたペレットについて、射出成形機（株式会社東芝製 射出成形機 E C 1 0 0）で 9 0 m m × 9 0 m m × 1 m m のシートを成形（成形条件：射出温度 2 8 0 ° C、射出時間 1 5 秒、金型温度 1 5 ° C、金型での冷却時間 2 0 秒）した。

[0121] 得られたシートについて、二軸延伸装置（株式会社東洋精機製作所製 E X - 1 0 B）にて、設定温度：9 7 ° C、延伸速度：縦横ともに 2 . 5 m m / m i n の条件で、二軸延伸装置が設定温度で安定状態であることを確認し、シートを設置して 2 . 5 分静置後、縦横に 4 倍に延伸した。得られた延伸シートに対し、下記の方法で測定した。これらの結果についてそれぞれ下記表 1 に示す。

尚、下記実施例 1 - 2 及び比較例 1 - 2 で実施したアニール処理とは、得られた延伸シートに対して、1 8 0 ° C に加熱された平板状のヒーターを延伸シートの上面から 1 0 m m の高さ、及び底面から 2 0 m m の高さに設置して、1 分間静置したものである。

[0122] (1) 黄色度 (Y. I.)

J I S K 7 1 0 5 に準拠し、分光測色計 (S C - P ; スガ試験機株式会社製) にて、試験片の黄色度 (Y. I.) を測定した。

[0123] (2) 透明性

J I S K 7 3 6 1、- K 7 1 3 6、I S O - 1 3 4 6 8、- 1 4 7 8 2 に準拠し、ヘイズメーター (ヘイズ・ガード I I ; 株式会社東洋精機製作所製) にて、H a z e [%] 及び C l a r i t y [%] を測定した。

[0124] (3) 引張試験

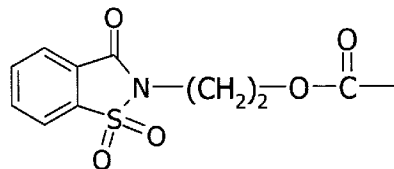
J I S K 7 1 2 7 - 1 9 9 9、I S O 5 2 7 - 3 に準拠し、引張試験機 (ストログラフ A P I I ; 株式会社東洋精機製作所製) にて、引張試験を行い、降伏点強度 [M P a] 及び引張弾性率 [G P a] を測定した。

[0125]

[表1]

		実施例 1-1	実施例 1-2	比較例 1-1	比較例 1-2	比較例 1-3	比較例 1-4
ペレット		A	A	なし	なし	A	B
含有量 ¹⁾		0.02	0.02	0	0	0.02	0.2
試験化合物		a	a	—	—	b	c
アニール処理 ²⁾ の有無		無	有	無	有	無	無
評価結果	Haze[%]	0.3	0.2	0.2	0.3	0.3	0.3
	Clarity[%]	100	99.9	100	100	100	100
	Y.I.	1.2	1.6	1.4	1.3	1.3	4.5
	降伏点強度[MPa]	126	123	116	135	120	118
	引張弾性率[GPa]	4.6	4.3	4.3	4.3	4.4	4.4

1) 含有量：ポリエチレンテレフタレート樹脂と末端修飾ポリエチレンテレフタレートから下記の基を除いた残部との合計100質量部に対する下記の基の含有量



2) アニール処理：180℃ 1分間

試験化合物 a：1, 2-ベンズイソチアゾール-3(2H)-オン1, 1-ジオキソドナトリウム塩

b：モンタン酸ナトリウム塩 (Clariant社製品名；リコモントNAV101)

c：カルボン酸ナトリウム塩

[0126] 上記実施例1-1および1-2より、試験片に対してアニール処理を実施すると、透明性が低下し、透明用途での利用は制限されてしまうことが確認できた。

[0127] 実施例1-1より本発明の成形体は、比較例1-1の結晶核剤非配合に対して、透明性が良好で着色が少なく、物性も大幅に改善されることが確認で

きた。

[0128] [参考例] ポリエチレンテレフタレートの末端修飾（ポリマーバウンド化）
の確認試験

あらかじめポリエチレンテレフタレート100質量部に対し、1, 2-ベンズイソチアゾール-3(2H)-オン1, 1-ジオキシドナトリウム塩1質量部を混合して、二軸押出機（装置：株式会社日本製鋼所製 TEX28V、シリンダ温度270℃、スクリュウ速度200rpm）にて造粒して得られたペレット10gを、ドライアイスで冷凍させて粉碎し、95%エタノール水溶液100mlで24時間還流させて、ペレットに含まれた添加剤成分をエタノール水溶液に抽出させ、イオンクロマトグラフィー（DIONE X社製DX320）にて定量したが、1, 2-ベンズイソチアゾール-3(2H)-オン、1-1-ジオキシドナトリウム塩は全く検出されなかった。分析条件は、下記の条件で行った。

カラム：Ionpac AS19、溶離液：水酸化カリウム、サプレッサ；ASRS 4mm、電流150mA、温度35℃。

[0129] X線光電子分光（株式会社島津クレイトス製 AXIS-ULTRA、測定条件；X線源：Mg 15kV, 15mA）により、下記のペレット又は化合物における窒素の1S軌道のエネルギー状態をX線光電子分光スペクトルにて確認した。図1は核剤未配合のPET、図2は1, 2-ベンズイソチアゾール-3(2H)-オン1, 1-ジオキシドナトリウム塩1%配合PET、図3は1, 2-ベンズイソチアゾール-3(2H)-オン1, 1-ジオキシドナトリウム塩3%配合PET、図4は1, 2-ベンズイソチアゾール-3(2H)-オン1, 1-ジオキシドナトリウム塩5%配合PET、図5は1, 2-ベンズイソチアゾール-3(2H)-オン1, 1-ジオキシドナトリウム塩、図6はN-エチルアルコール-1, 2-ベンズイソチアゾール-3(2H)-オン1, 1-ジオキシドのX線光電子分光スペクトルを表す。

[0130] 図1より、窒素を持たないポリエチレンテレフタレート（PET）は、ピ

ークを有していない。図5は、1, 2-ベンズイソチアゾール-3 (2H)-オン1, 1-ジオキシドナトリウム塩のX線光電子分光スペクトルであるが、図2~図4より、ポリエチレンテレフタレートに1, 2-ベンズイソチアゾール-3 (2H)-オン1, 1-ジオキシドナトリウム塩を配合した場合のX線光電子分光スペクトルと比べて、ピークの位置がずれていることが確認された。

図6より、N-エチルアルコール-1, 2-ベンズイソチアゾール-3 (2H)-オン1, 1-ジオキシドの化合物のX線光電子分光スペクトルを比較すると、図6は図2~図4とピーク位置が一致しており、図2~図4のX線光電子分光スペクトルは、1, 2-ベンズイソチアゾール-3 (2H)-オン1, 1-ジオキシドナトリウム塩がポリエステル樹脂にバウンド化していることを示す結果が得られた。

[0131] [実施例2-1~3-1、比較例2-1~3-3]

ポリブチレンテレフタレート（ウィンテック株式会社製 商品名：ジュラネックス2002）100質量部に対し、下記表2に記載の添加剤を添加・混合後、4時間150℃で乾燥し、二軸押出機（TEX28V；株式会社日本製鋼所製）により、260℃のシリンダ温度及び200rpmのスクリュウ速度で熔融混練して、ペレットを得た。得られたペレットを50℃のギャーオープンで半日乾燥した後、射出成形機（EC100；株式会社東芝製）を用いて、JIS K7139-2007、ISO-3167-2002に規定されているA型試験片（厚み4mm）を成形（成形条件：射出温度250℃、金型温度50℃）した。

得られたA型試験片を用いて、下記に示す評価を実施した。

[0132] (光沢度)

JIS K7105-1981に準拠し、A型試験の両端のつかみ部分の光沢度（60°）を測定した。

[0133] (衝撃試験)

JIS K7111-1-2006、ISO179-1-2000に準拠

し、A型試験片の両端のつかみ部分を切り取り、長さ80mm、幅10mm、厚み4mmの試験片として、シャルピー衝撃試験機（DG-CB；株式会社東洋精機製作所製）を用いて、シャルピーエッジワイズ衝撃試験を行い、衝撃強度を測定した。これらの結果について、下記表2及び表3に示す。

[0134]（示差走査熱量測定；DSC）

JIS K7121-1987に準拠し、得られたペレットを示差走査熱量測定機（ダイヤモンド；パーキンエルマー社製）にて、窒素雰囲気下、5℃から10℃/minの速度で260℃まで昇温し、10分間保持後、-10℃/minで100℃まで冷却して得られたDSC曲線から、結晶化ピーク温度（結晶化温度）及びピーク面積（ ΔH_c ；結晶化エンタルピー）を求めた。これらの結果について下記表2及び表3にそれぞれ示す。

尚、 ΔH_c は、成形品の成形性に大きく影響する因子であり、 ΔH_c が大であるほど、成形性が良好に得られる。

[0135]（荷重たわみ温度；HDT）

JIS K7191-2-2007，ISO75-2-2004に準拠し、A型試験片の両端のつかみ部分を切り取り、長さ80mm、幅10mm、厚み4mmの試験片を作製し、HDT試験装置（株式会社東洋精機製作所製 Heat Deformation Tester 3M-2）を用いて、フラットワイズで荷重1.80MPaの条件で測定した。これらの結果について下記表2及び表3にそれぞれ示す。

[0136]（曲げ試験）

JIS K7171-1994，ISO178-1993に準拠し、A型試験片の両端のつかみ部分を切り取り、長さ80mm、幅10mm、厚み4mmの試験片を作製し、曲げ試験機（株式会社島津製作所製）を用いて曲げ強度を測定した。これらの結果について下記表2及び表3にそれぞれ示す。

[0137]

[表2]

		実施例 2-1	比較例 2-1	比較例 2-2	比較例 2-3
配合	PBT ^{*1}	100	100	100	100
	化合物 No.1 ^{*2}	0.3	—	—	—
	N-1 ^{*3}	—	—	0.3	—
	N-2 ^{*4}	—	—	—	0.3
評価結果	光沢度 Gloss60°	103	102	103	101
	衝撃強度[MPa]	64.2	59.9	60.1	60.2
	結晶化温度[°C]	203.8	202.4	204.0	202.9
	ΔHc[J/g]	38.3	35.3	36.6	35.4
	HDT[°C]	57.8	53.3	53.8	53.9
	曲げ強度[MPa]	89.8	86.2	85.2	85.4

※1：ポリブチレンテレフタレート（ウィンテック株式会社製 ジュラネックス2002）

※2：1，2-ベンズイソチアゾール-3（2H）-オン1，1-ジオキシドナトリウム塩

※3：クラリアント社製 Licomont NaV 101（主成分はモンタン酸カルシウム塩）

※4：メチレンビス（2，4-ジ-tert-ブチルフェニル）ホスフェートナトリウム塩

[0138]

[表3]

		実施例 3-1	比較例 3-1	比較例 3-2	比較例 3-3
配合	PBT ^{*1}	100	100	100	100
	化合物 No.1 ^{*2}	0.3	—	—	—
	N-1 ^{*3}	—	—	0.3	—
	N-2 ^{*4}	—	—	—	0.3
	可塑剤 ^{*5}	3	3	3	3
評価結果	光沢度 Gloss60°	104	100	103	98
	衝撃強度[MPa]	59.4	56.2	56.5	55.8
	結晶化温度[°C]	203.3	201.8	203.6	202.0
	ΔH_c [J/g]	39.4	37.2	37.7	37.5
	HDT[°C]	57.7	53.8	54.5	55.7
	曲げ強度[MPa]	65.9	65.9	64.5	56.4

※5：ポリエーテルエステル系可塑剤（株式会社 A D E K A 製 商品名：アデカサイザーRS-735）

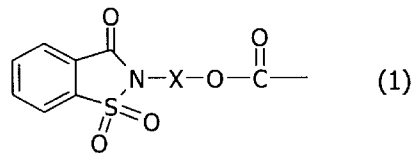
[0139] 上記表2の比較例2-2、2-3より、従来の結晶核剤を配合したポリエステル樹脂組成物は比較例2-1の結晶核剤非配合のポリエステル樹脂組成物と比べて、若干の物性改良効果が得られるものの、 ΔH_c の改善効果が乏しかったのに対し、実施例2-1より本願発明のポリエステル樹脂組成物は ΔH_c が改善されており、成形性に優れることが確認できた。また、荷重たわみ温度（HDT）も改善されており、成形品の使用可能な温度範囲を高くすることが可能であることが確認できた。

[0140] さらに、実施例3-1より可塑剤を併用すると ΔH_c はさらに向上し、良好な成形性が得られることが確認できた。

請求の範囲

[請求項1] (A) ポリエステル樹脂と、(B 1) 末端修飾ポリエチレンテレフタレートとを含有するポリエステル樹脂組成物であって、

前記(B 1) 末端修飾ポリエチレンテレフタレートが、下記一般式(1)で表される基、又は、下記一般式(1)で表される基及びカルボン酸金属塩で末端が修飾されたポリエチレンテレフタレートであることを特徴とするポリエステル樹脂組成物。

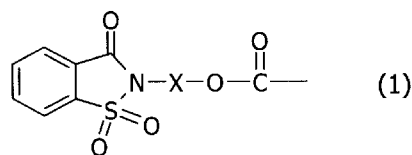


(式中、Xは、直接結合又は炭素原子数1～12のアルキレン基を表す。)

[請求項2] 前記(A) ポリエステル樹脂と、前記(B 1) 末端修飾ポリエチレンテレフタレートから前記一般式(1)で表される基を除いた残部との合計100質量部に対して、前記一般式(1)で表される基の含有量が0.001～1質量部である請求項1記載のポリエステル樹脂組成物。

[請求項3] (A) ポリエステル樹脂と、(B 2) 末端修飾ポリブチレンテレフタレートとを含有するポリエステル樹脂組成物であって、

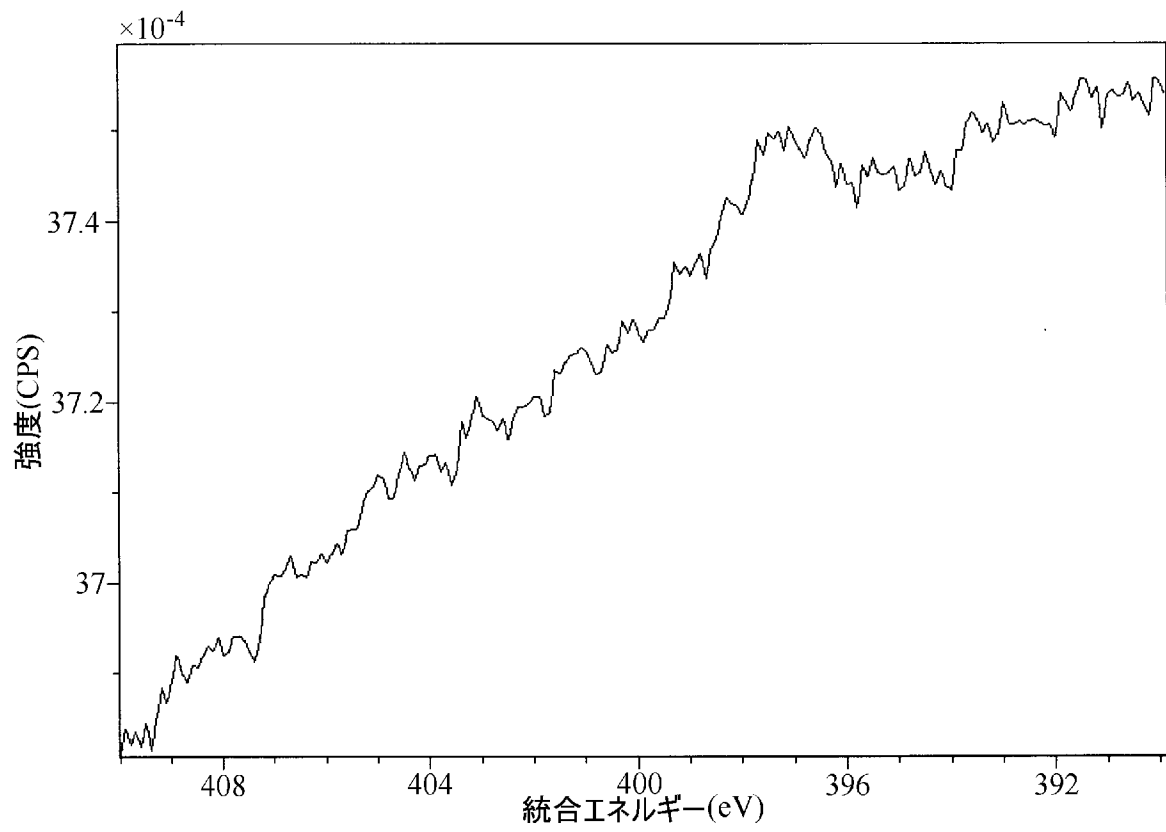
前記(B 2) 末端修飾ポリブチレンテレフタレートが、下記一般式(1)で表される基、又は、下記一般式(1)で表される基及びカルボン酸金属塩で末端が修飾されたポリブチレンテレフタレートであることを特徴とするポリエステル樹脂組成物。



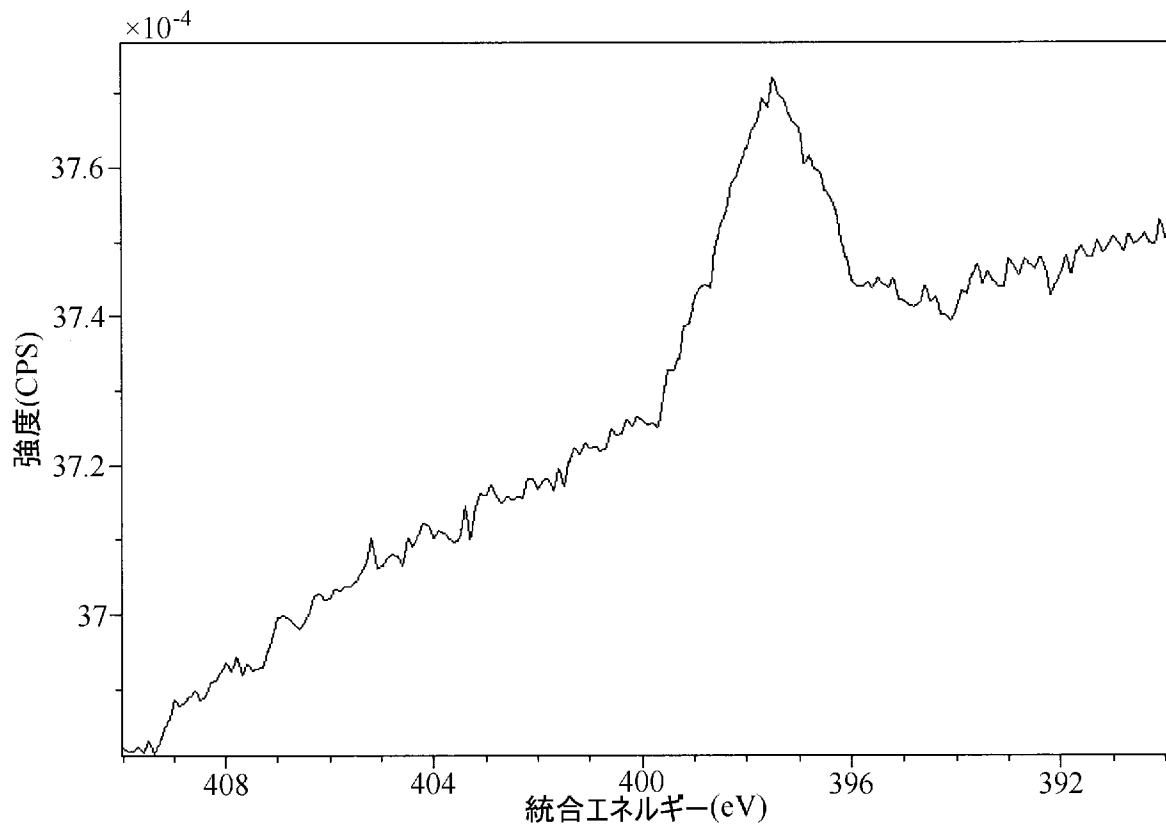
(式中、Xは、直接結合又は炭素原子数1～12のアルキレン基を表す。)

- [請求項4] 前記（A）ポリエステル樹脂と、前記（B2）末端修飾ポリブチレンテレフタレートから前記一般式（1）で表される基を除いた残部との合計100質量部に対して、前記一般式（1）で表される基の含有量が0.001～5質量部である請求項3記載のポリエステル樹脂組成物。
- [請求項5] 前記（A）ポリエステル樹脂が、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリトリメチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート及びポリブチレンナフタレートからなる群から選ばれる1種以上のポリエステル樹脂である請求項1または3記載のポリエステル樹脂組成物。
- [請求項6] 前記カルボン酸金属塩が、カルボン酸ナトリウム塩である請求項1または3記載のポリエステル樹脂組成物。
- [請求項7] 請求項1～6のいずれか一項記載のポリエステル樹脂組成物を成形して得られることを特徴とする成形体。
- [請求項8] 請求項1又は2に記載のポリエステル樹脂組成物をシート成形してなるシートであって、アニール処理をされていないことを特徴とするシート。

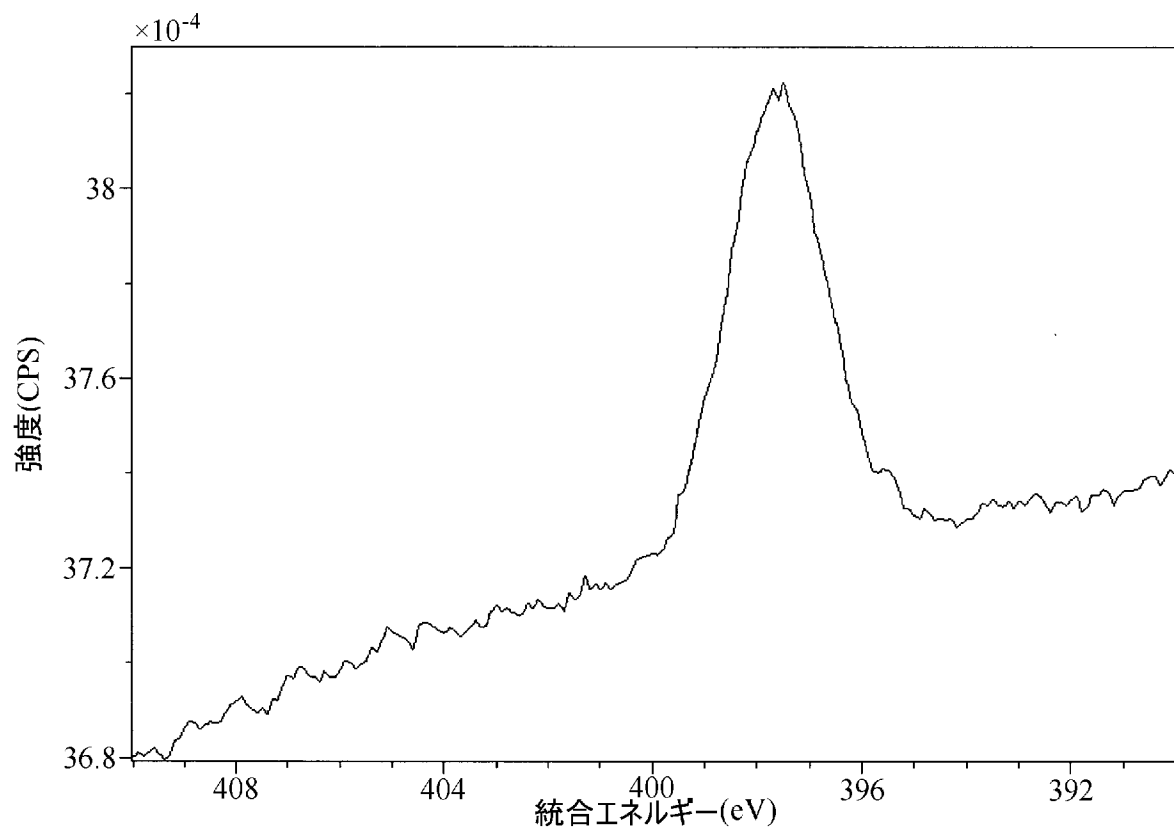
[図1]



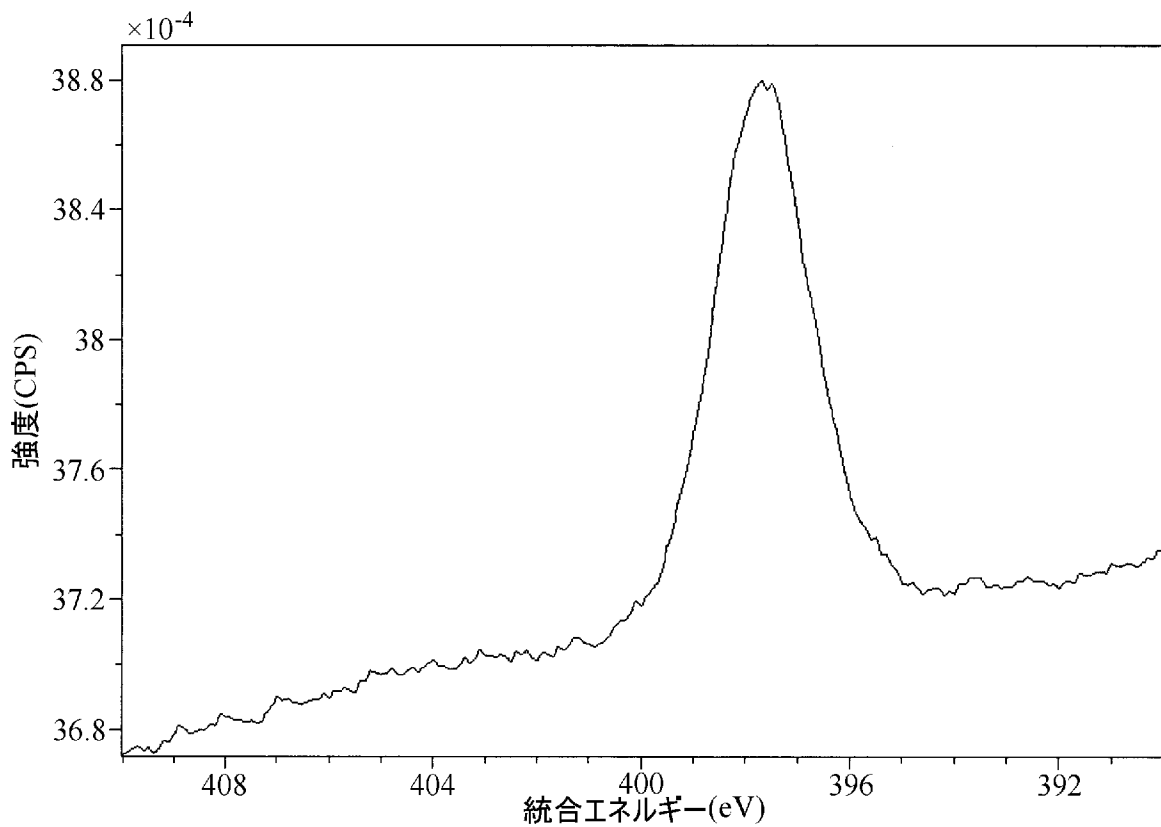
[図2]



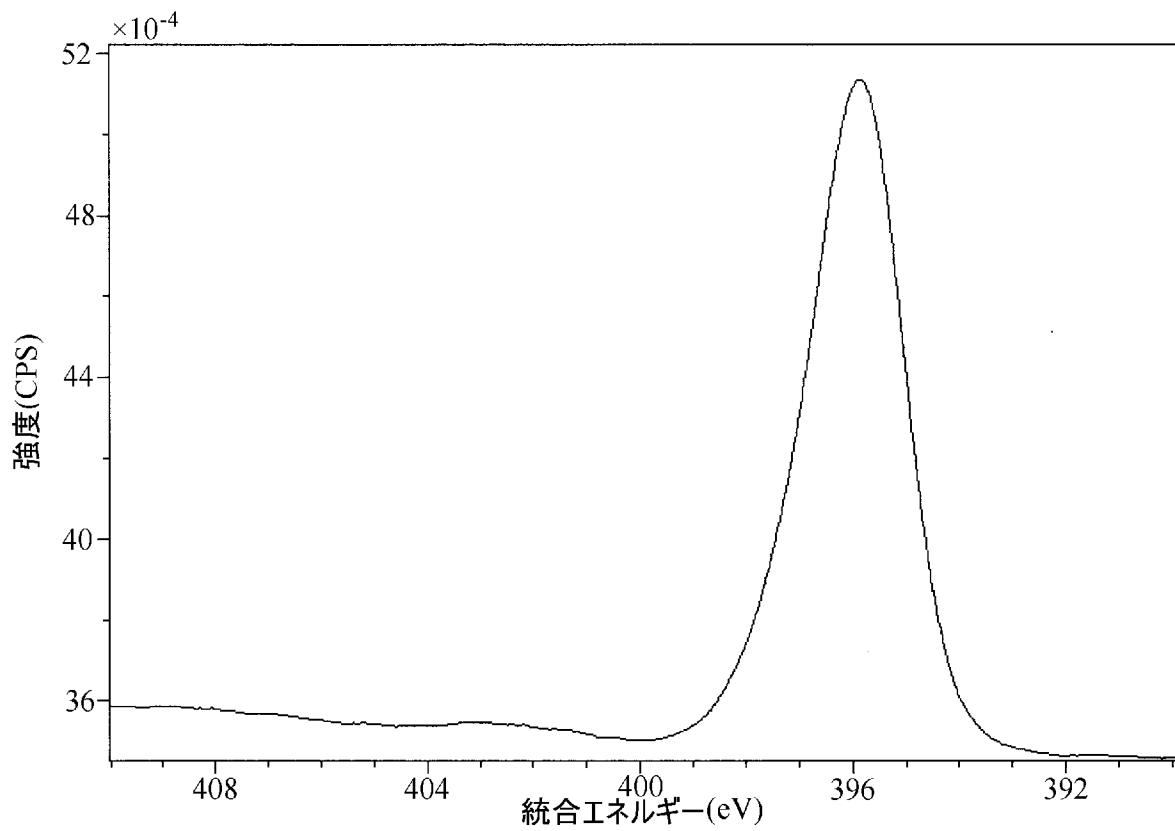
[図3]



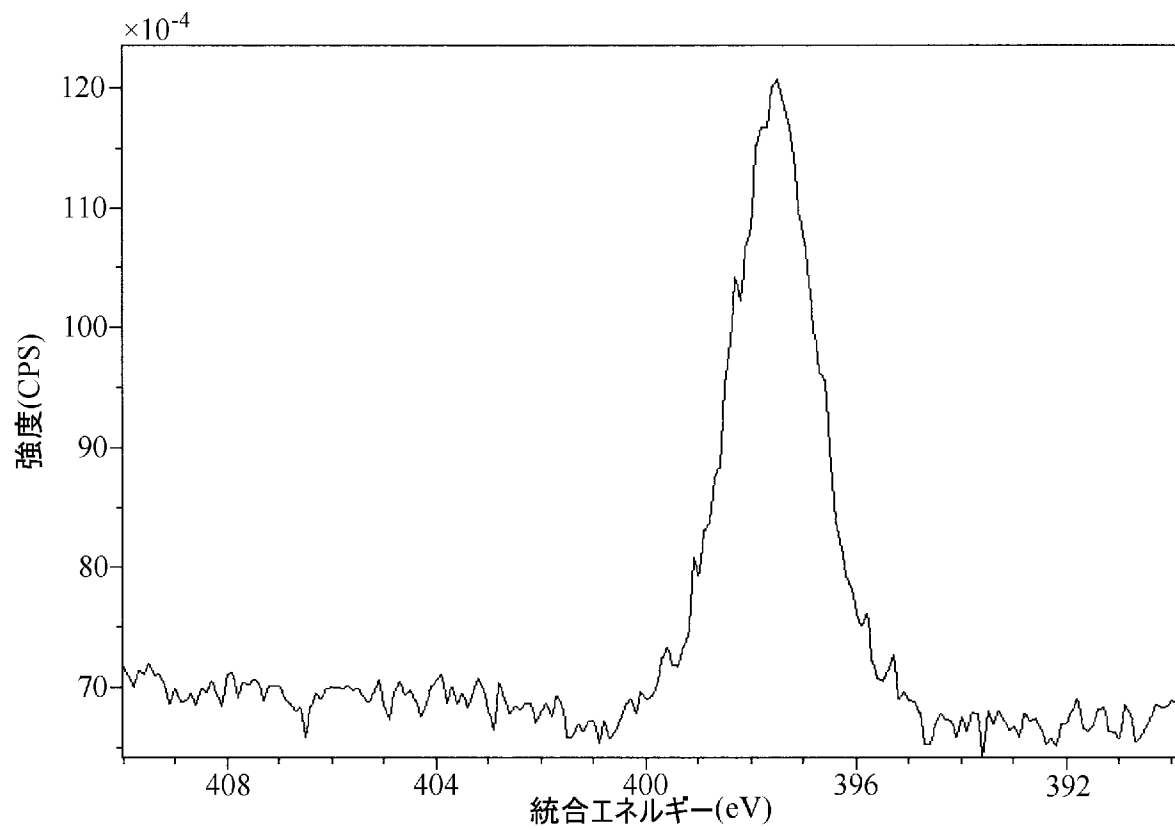
[図4]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/077422

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C08L67/02(2006.01)i, C08G63/91(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C08K3/00-13/08, C08L1/00-101/14, C08G63/00-63/91

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
 Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2011
 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2011 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2011

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2007-327028 A (ADEKA Corp.), 20 December 2007 (20.12.2007), claim 6; paragraphs [0001], [0023], [0050], [0070], [0073]; examples 1 to 8 & US 2009/0176913 A1 & EP 2022826 A1	1-8
A	JP 2-248460 A (Mitsubishi Rayon Co., Ltd.), 04 October 1990 (04.10.1990), entire text (Family: none)	1-8
A	JP 60-210636 A (Mitsui Petrochemical Industries, Ltd.), 23 October 1985 (23.10.1985), entire text (Family: none)	1-8

Further documents are listed in the continuation of Box C. See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
06 December, 2011 (06.12.11)

Date of mailing of the international search report
20 December, 2011 (20.12.11)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/077422

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 3-273050 A (Toyobo Co., Ltd.), 04 December 1991 (04.12.1991), entire text (Family: none)	1-8
A	JP 2-187451 A (GE Plastics Japan Ltd.), 23 July 1990 (23.07.1990), entire text (Family: none)	1-8

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
 Int.Cl. C08L67/02(2006.01)i, C08G63/91(2006.01)i

B. 調査を行った分野
 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))
 Int.Cl. C08K3/00-13/08, C08L1/00-101/14, C08G63/00-63/91

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2011年
日本国実用新案登録公報	1996-2011年
日本国登録実用新案公報	1994-2011年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2007-327028 A (株式会社ADEKA) 2007. 12. 20, 請求項 6, 段落【0001】, 段落【0023】, 段落【0050】, 段落【0070】, 段落【0073】, 実施例 1-8 & US 2009/0176913 A1 & EP 2022826 A1	1-8
A	JP 2-248460 A (三菱レイヨン株式会社) 1990. 10. 04, 全文 (ファミリーなし)	1-8

C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー	の日の後に公表された文献
「A」特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの	「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの	「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)	「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日 06. 12. 2011	国際調査報告の発送日 20. 12. 2011
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 米村 耕一 電話番号 03-3581-1101 内線 3457

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 60-210636 A (三井石油化学工業株式会社) 1985. 10. 23, 全文 (ファミリーなし)	1-8
A	JP 3-273050 A (東洋紡績株式会社) 1991. 12. 04, 全文 (ファミリーなし)	1-8
A	JP 2-187451 A (日本ジーイープラスチック株式会社) 1990. 07. 23, 全文 (ファミリーなし)	1-8